



# Interactions Hydrogène - Plasticité dans le Nickel et ses Alliages

Gouenou Girardin

## ► To cite this version:

Gouenou Girardin. Interactions Hydrogène - Plasticité dans le Nickel et ses Alliages. Mécanique [physics.med-ph]. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2004. Français. NNT : . tel-00535777

**HAL Id: tel-00535777**

**<https://theses.hal.science/tel-00535777>**

Submitted on 12 Nov 2010

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ECOLE NATIONALE SUPERIEURE  
DES MINES DE SAINT-ETIENNE

UNIVERSITE JEAN MONNET  
SAINT-ETIENNE

N° D'ORDRE 334 TD

## **Thèse**

présentée par

**Gouenou GIRARDIN**

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR**

**en Science et Génie des Matériaux**

de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne  
et de l'Université Jean Monnet de Saint-Etienne

# **INTERACTIONS HYDROGENE-PLASTICITE DANS LE NICKEL ET SES ALLIAGES**

Soutenue le 12 mars 2004 à l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, devant  
le jury composé de :

MM.

J.L. STRUDEL

Y. BRECHET

J. CHENE

E. ANDRIEU

L. KUBIN

D. DELAFOSSE

Professeur, ENS des Mines de Paris

Professeur, INP Grenoble

Directeur de Recherche CNRS, Orsay

Professeur, INP Toulouse

Directeur de Recherche CNRS, ONERA

Professeur, ENS des Mines de Saint-Etienne

Président

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Directeur de Thèse



ECOLE NATIONALE SUPERIEURE  
DES MINES DE SAINT-ETIENNE

UNIVERSITE JEAN MONNET  
SAINT-ETIENNE

N° D'ORDRE 334 TD

## **Thèse**

présentée par

**Gouenou GIRARDIN**

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR**

**en Science et Génie des Matériaux**

de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne  
et de l'Université Jean Monnet de Saint-Etienne

# **INTERACTIONS HYDROGENE-PLASTICITE DANS LE NICKEL ET SES ALLIAGES**

Soutenue le 12 mars 2004 à l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, devant  
le jury composé de :

MM.

J.L. STRUDEL

Y. BRECHET

J. CHENE

E. ANDRIEU

L. KUBIN

D. DELAFOSSE

Professeur, ENS des Mines de Paris

Professeur, INP Grenoble

Directeur de Recherche CNRS, Orsay

Professeur, INP Toulouse

Directeur de Recherche CNRS, ONERA

Professeur, ENS des Mines de Saint-Etienne

Président

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Directeur de Thèse



## Remerciements :

En premier lieu, je tiens remercier les membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail et en particulier Monsieur Jean-Loup Strudel de m'avoir fait l'honneur de présider ce jury.

Je suis très reconnaissant à Messieurs Yves Bréchet et Jacques Chêne d'avoir accepté la « lourde » charge d'évaluer ce travail et à Monsieur Eric Andrieu pour sa participation à mon jury.

Je souhaite également témoigner ma gratitude à Monsieur Ladislav Kubin de m'avoir fait l'honneur de siéger dans mon jury et de l'attention particulière qu'il a bien voulu porter sur mon travail en plusieurs occasions.

Je tiens à remercier plus particulièrement David Delafosse, qui m'a proposé ce sujet et en a dirigé les recherches, pour son dynamisme et ses fameuses « petites idées à la ... » ainsi que pour la convivialité de nos rapports.

Je remercie également Marc Fivel pour ses lumières et son aide quand au comportement des « jojo », John Dunlop pour les discussions constructives que nous avons eu ensemble et Xavier Feaugas pour son savoir-faire en microscopie électronique en transmission (et accessoirement pour son rôle de Zorro...).

Je remercie également toute l'équipe qui gravite autour de la salle des essais mécaniques et plus particulièrement de sa cafetière et des fameux gâteaux de Claire... pour ces années passées en leur compagnie. Merci aussi à tous ceux qui m'ont permis de mener à bien ce travail dans des conditions optimales à savoir Claude, Delphine et Marilyne pour ce qui est des matériaux, Martial pour sa participation active au démontage/remontage de l'INSTRON, Christel et Pierrette pour leur bonne humeur ainsi que Robert et Olivier pour leur disponibilité.

Un grand merci à tous les compagnons de route croisés en chemin pour avoir égayé et pimenté mon quotidien.

Enfin, ce travail est dédié à LOEVA, SOLAL et MATHILDE.



## - SOMMAIRE -

<b>INTRODUCTION</b>	13
<b>I. EFFETS DE L'HYDROGENE EN CORROSION SOUS CONTRAINTE ET CARACTERISATION DES INTERACTIONS HYDROGENE-PLASTICITE</b>	
<b><u>Introduction</u></b>	21
<b><u>I.1 Hydrogène et mécanismes d'endommagement par Corrosion Sous Contrainte</u></b>	
<b>I.1.1 Contribution de l'hydrogène au processus de CSC</b>	22
I.1.1.1 <u>Propriétés déterminantes de l'hydrogène</u>	
I.1.1.2 <u>Origine de l'hydrogène en Corrosion Sous Contrainte</u>	
<b>I.1.2 Modèles de fragilisation induite par l'hydrogène</b>	27
I.1.2.1 <u>Plasticité induite par l'hydrogène adsorbé</u>	
I.1.2.2 <u>Hydrogen Enhanced Localized Plasticity (HELP)</u>	
<b>I.1.3 Mécanisme de rupture en Corrosion Sous Contrainte assistée par l'hydrogène</b>	30
<b><u>I.2 Interactions hydrogène-dislocations</u></b>	
<b>I.2.1 Rôle des dislocations dans le transport de l'hydrogène</b>	32
<b>I.2.2 Manifestation microscopique des interactions hydrogène-dislocations</b>	33
I.2.2.1 <u>Mouvement des dislocations</u>	
I.2.2.2 <u>Glissement dévié</u>	
<b>I.2.3 Manifestation macroscopique des interactions hydrogène-dislocations</b>	37
I.2.3.1 <u>Planéité du glissement</u>	
I.2.3.2 <u>Instabilités plastiques</u>	
<b><u>I.3 Effets de l'hydrogène sur la contrainte d'écoulement : durcissement ou adoucissement ?</u></b>	
<b>I.3.1 Fer</b>	41
<b>I.3.2 Aciers inoxydables austénitiques</b>	43
<b>I.3.3 Nickel et alliages à base de nickel</b>	46



<b><u>Conclusion</u></b>	50
--------------------------	----

<b><u>Bibliographie - I</u></b>	52
---------------------------------	----

## **II. EFFETS DE VIEILLISSEMENT**

<b><u>Introduction</u></b>	59
----------------------------	----

### **II.1 Mécanismes de Vieillissement**

<b>II.1.1 Effet Portevin-Le Chatelier et vieillissement dynamique</b>	61
---	----

II.1.1.1 Description des mécanismes élémentaires

II.1.1.2 Le « dislocation model »

<b>II.1.2 Modélisation du vieillissement statique</b>	68
---	----

II.1.2.1 Modélisation

II.1.2.2 Etude de l'influence des différents paramètres expérimentaux

### **II.2 Caractérisation expérimentale du traînage des atmosphères de Cottrell**

<b>II.2.1 Matériaux et chargements</b>	74
--	----

II.2.1.1 Caractérisation des matériaux

II.2.1.2 Technique de chargement en hydrogène

<b>II.2.2 Techniques d'analyse</b>	78
------------------------------------	----

II.2.2.1 Mesure de la sensibilité de la contrainte d'écoulement à la vitesse de déformation

II.2.2.2 Détermination du pic de vieillissement statique  $\Delta\sigma$

<b>II.2.3 Résultats</b>	81
-------------------------	----

II.2.3.1 Détermination du domaine de vieillissement dynamique

II.2.3.2 Effet du transport de l'hydrogène par les dislocations sur la ductilité du Ni-16Cr

II.2.3.3 Analyse des essais de vieillissement statique

<b><u>Conclusion</u></b>	91
--------------------------	----

<b><u>Bibliographie - II</u></b>	93
----------------------------------	----

## **III. MODELISATION DES EFFETS DE L'HYDROGENE SUR LES MECANISMES DE PLASTICITE**

### **Introduction** 97

#### **III.1 Influence sur les propriétés individuelles des dislocations**

##### **III.1.1 Relaxation du champ de contrainte autour d'une dislocation coin** 98

###### III.1.1.1 Théorie élastique linéaire de l'équilibre entre solution solide interstitielle et métal

###### III.1.1.2 Interaction hydrogène-dislocation coin

##### **III.1.2 Ecrantage des interactions de paires** 103

##### **III.1.3 Energie de ligne** 107

##### **III.1.4 Tension de ligne** 110

###### III.1.4.1 Expression simplifiée de la tension de ligne : Modèle de De Wit et Koehler

###### III.1.4.2 Introduction des interactions entre segments : Modèle de Jøssang *et al.*

###### III.1.4.3 Bilan et comparaison entre les deux modèles

#### **III.2 Effets de l'écrantage sur les mécanismes de plasticité**

##### **III.2.1 Mécanisme de multiplication** 115

###### III.2.1.1 Activation d'une boucle de Frank-Read

###### III.2.1.2 Expansion isotrope d'une boucle

##### **III.2.2 Stabilité des jonctions entre dislocations parfaites** 122

###### III.2.2.1 Formation des jonctions

###### III.2.2.2 Influence de l'hydrogène sur le comportement des jonctions sous contrainte

##### **III.2.3 Comportement des dislocations partielles dissociées** 131

###### III.2.3.1 Influence de l'hydrogène sur la probabilité de glissement dévié

###### III.2.3.2 Jonction de Lomer-Cottrell

###### III.2.3.3 Comportement d'un nœud triple

### **Conclusion** 146

### **Bilan - III** 149

### **Bibliographie - III** 150

## **IV. MANIFESTATIONS MACROSCOPIQUES DES EFFETS DE L'HYDROGENE SUR LA CONTRAINTE D'ECOULEMENT**

### **Introduction** 155

#### **IV.1 Etude des effets de l'hydrogène sur le comportement de monocristaux orientés pour glissement simple**

##### **IV.1.1 Fatigue oligocyclique** 157

IV.1.1.1 Localisation de la déformation plastique en fatigue oligocyclique

IV.1.1.2 Caractérisation des interactions hydrogène-dislocations en fatigue

##### **IV.1.2 Comportement en traction** 164

IV.1.2.1 Influence de l'hydrogène sur le nickel

IV.1.2.2 Comportement en traction de l'alliage Ni-16Cr

#### **IV.2 Effets de l'hydrogène sur le comportement en traction de polycristaux**

##### **IV.2.1 Influence de l'hydrogène sur le comportement en traction du nickel** 172

##### **IV.2.2 Effet de l'hydrogène sur l'alliage binaire Ni-16Cr** 175

##### **IV.2.3 Manifestation des effets de l'hydrogène sur un acier austénitique AISI 316L** 177

IV.2.3.1 Détermination du domaine de vieillissement dynamique

IV.2.3.2 Effet du transport de l'hydrogène par les dislocations sur la ductilité du Ni-16Cr

#### **IV.3 Discussion sur les manifestations macroscopiques de l'hydrogène**

##### **IV.3.1 Le glissement plan** 180

##### **IV.3.2 Les mécanismes de durcissement** 181

##### **IV.3.3 Perspectives** 182

### **Conclusion** 184

### **Bibliographie - IV** 187

## **CONCLUSION** 191

## **ANNEXES**

<b>Annexe I</b>	199
<b>Annexe II</b>	200
<b>Annexe III</b>	201



## **- INTRODUCTION -**

L'association entre sollicitations mécaniques et exposition à un environnement chimique plus ou moins agressif explique un grand nombre de ruptures en service dans des secteurs industriels tels que la pétrochimie, le nucléaire. La Corrosion Sous Contrainte (CSC) est un mécanisme d'endommagement particulièrement sévère qui résulte d'une synergie entre effets de corrosion électrochimique et de sollicitation mécanique monotone. Ces phénomènes conduisent à une rupture macroscopiquement fragile de matériaux ductiles à l'air. En outre, ce type d'endommagement présente la particularité de se manifester dans des conditions modérées tant du point de vue de la corrosion que des sollicitations mécaniques. La compréhension de l'endommagement par CSC et des mécanismes qui y conduisent constitue un enjeu industriel majeur. Le coût de la corrosion et de ses conséquences approche 4% du PNB d'après Trottier (cours « Durabilité des structures et environnement » - ENS des Mines de Paris). Les études menées dans ce domaine visent à proposer une modélisation prédictive du comportement en service de couples matériaux/milieus. On pourra se référer aux comptes rendus de la dernière conférence internationale sur les effets de l'hydrogène et les interactions corrosion-déformation (H-CDI 2002, Jackson Lake Lodge, Wyoming) pour une revue exhaustive des connaissances dans ce domaine [1]. Du point de vue des applications industrielles, on peut classer les effets de l'hydrogène sur l'endommagement des alliages métalliques en trois grandes catégories, :

- Les systèmes conduisant à la formation d'hydrides (alliages de zirconium et de titane dans certaines conditions).
- Les effets de l'hydrogène dans les aciers ferritiques et martensitiques, catégorie qui regroupe en fait une multiplicité de mécanismes. Pour la fragilisation « à froid » et la CSC, les aspects importants sont la perte de cohésion et le transport de l'hydrogène par la plasticité de fond de fissure.
- Les effets de l'hydrogène en CSC dans les alliages austénitiques (aciers inoxydables et alliages à base de nickel). La phénoménologie des endommagements observés est très variée. Elle va d'une simple perte de ductilité à des ruptures transgranulaires purement fragiles, en passant par une variété de ruptures interfaciales.

C'est à cette dernière catégorie qu'est consacrée cette étude. Les matériaux considérés étant intrinsèquement ductiles, l'identification des mécanismes d'endommagement conduisant à ces ruptures fragiles fait l'objet de controverses depuis plusieurs décennies. Il semble en fait que plusieurs mécanismes agissent suivant les cas de manière concurrente ou synergique. La seule manière de clarifier ces débats est donc d'examiner ces mécanismes élémentaires de manière systématique et quantitative en associant modélisation et expérience sur des systèmes modèles soigneusement sélectionnés.

La caractéristique essentielle du processus de CSC réside dans le caractère discontinu et cristallographique de la propagation des fissures transgranulaires. Une étape essentielle de l'étude de la fissuration par CSC consiste à observer la morphologie et la cristallographie des faciès de rupture. En se basant sur des études expérimentales détaillées ou sur les analogies avec d'autres modes d'endommagement assisté par l'environnement, plusieurs modèles ont été proposés afin de caractériser et de reproduire les cristallographies observées. Le point commun à ces études a été la mise en évidence du fait que les mécanismes élémentaires de rupture en CSC résultent des interactions corrosion-déformation. Un premier couplage entre corrosion et déformation plastique se manifeste dès l'étape liminaire du mécanisme de CSC par la rupture du film passif due à la déformation plastique ce qui aboutit à une localisation de la corrosion. L'étape suivante à cette corrosion localisée et à l'absorption de défauts ponctuels qui en résulte (lacunes et/ou hydrogène monoatomique) est la modification locale de la déformation plastique au niveau des défauts de surface ou en pointe de fissure. Cette modification affecte alors l'écrantage des fissures et leur propagation. Ainsi, les mécanismes de fragilisation en CSC ne peuvent être modélisés de façon satisfaisante par une simple superposition de lois d'endommagement mécaniques et électrochimiques, puisqu'ils résultent d'effets synergiques.

Compte tenu des similitudes observées entre les ruptures fragiles de CSC et celles résultant de la Fragilisation Assistée par l'Hydrogène (FAH), il est apparu que certains mécanismes à l'œuvre en FAH pouvaient intervenir dans les mécanismes de CSC. En conséquence, certains modèles de CSC et de FAH sont fondés sur des mécanismes élémentaires communs. L'un des points clefs de ces modèles est la modification des interactions entre dislocations sous l'action de l'hydrogène et en particulier le fait que l'hydrogène facilite les mécanismes de déformation plastique. Les tenants de ces modèles parlent alors d'augmentation locale de la plasticité induite par l'hydrogène. Cependant, la principale difficulté que rencontre cette approche est que ces mécanismes locaux ne se manifestent généralement pas à l'échelle macroscopique. Il est donc très difficile de relier ces effets à des paramètres directement mesurables. Or, une modélisation efficace des phénomènes d'endommagement nécessite une description et une validation expérimentale quantitative des mécanismes à l'œuvre.

Face à cette problématique, notre objectif est de valider et de caractériser expérimentalement les limites d'une approche basée sur les interactions élastiques entre défauts. Il s'agit donc de définir la part revenant aux mécanismes élastiques et le cas échéant d'identifier les éléments manquants à une modélisation efficace des effets induits par l'hydrogène tels que les effets de cœur. Notre démarche est donc développer une « approche globale » associant étroitement expériences et modélisation des mécanismes élémentaires afin de lister les différentes contributions des interactions hydrogène-dislocations à la contrainte d'écoulement. Pour ce faire, nous nous intéressons tout particulièrement aux interactions hydrogène-dislocations à une échelle de la plasticité macroscopique et non en pointe de fissure. En effet, si notre objectif est bien la modélisation quantitative des interactions corrosion-déformation, leur quantification expérimentale est rendue impossible par la trop grande localisation de ces phénomènes. La démarche mise en œuvre vise donc à étudier le problème de manière indirecte par l'analyse quantitative de la plasticité de matériaux chargés en hydrogène de façon homogène. Cette approche s'articule autour de deux axes : la quantification des interactions hydrogène-dislocations et l'étude numérique et expérimentale des effets de l'hydrogène sur la plasticité des métaux CFC.

La méthodologie que nous employons vise, dans un premier temps, à caractériser macroscopiquement les interactions dynamiques hydrogène-dislocations par des essais de vieillissement. Dans un deuxième temps, nous évaluons l'influence de l'hydrogène sur les mécanismes de la plasticité en nous appuyant sur des modèles analytiques classiques de la théorie élastique des dislocations. C'est à l'issue de ces deux étapes que nous analysons l'influence de l'hydrogène sur la contrainte d'écoulement de matériaux CFC.

Expérimentalement, nous faisons appel à des matériaux modèles, à savoir des éprouvettes mono et polycristallines de pureté contrôlée. Nous choisissons d'étudier les effets de l'hydrogène sur du nickel pur et un alliage binaire à base de nickel contenant 16% massique de chrome. Le choix de la composition de cet alliage est guidé par la volonté de se rapprocher de matériaux industriels, notamment de l'alliage 600. En outre, nous employons une technique d'hydrogénation qui nous garantit d'une part une maîtrise du taux d'hydrogène et d'autre part une concentration de soluté homogène dans les échantillons.

En matière de modélisation, nous combinons deux approches, l'une relative aux effets de l'hydrogène, l'autre aux mécanismes de la plasticité. En ce qui concerne les effets de l'hydrogène, nous nous appuyons sur les travaux de Larché et Cahn [2], Sofronis et Birnbaum [3, 4] ainsi que sur ceux de Chateau *et al.* [5]. Larché et Cahn ont les premiers analysé les interactions entre effets chimiques et élastiques induits par l'hydrogène. Sofronis et Birnbaum ont affiné cette approche et ont développé une simulation des interactions hydrogène-dislocations par une méthode de calcul continue de type « mécanique des milieux continus ». L'originalité des travaux de Chateau *et al.* repose sur la discrétisation de la distribution d'hydrogène afin d'introduire ces effets dans des simulations de type



« dynamique des dislocations discrètes » en pointe de fissure. Un des résultats principaux est la définition d'une expression analytique du taux d'écrantage des interactions de paires induit par l'hydrogène. A partir de cette expression de « l'indice d'écrantage », la démarche mise en œuvre consiste à revisiter les résultats classiques de la plasticité tels que décrits dans le Friedel [6] à l'aune des effets de l'hydrogène. Pour ce faire, nous utilisons des modèles élastiques « classiques », et notamment le modèle dit de tension de ligne de De Wit et Koehler [7]. L'intérêt de ce modèle est d'apporter une évaluation analytique des effets de l'hydrogène sur différents mécanismes participant à la déformation plastique.

Le premier chapitre présente le contexte de l'étude, à savoir le rôle des interactions hydrogène-plasticité dans les mécanismes d'endommagement. Nous présentons un certain nombre de manifestations directes des interactions hydrogène-dislocations. L'observation *in-situ* au MET du comportement des dislocations en présence d'hydrogène vient étayer les modèles de CSC et de FAH qui font appel aux mécanismes d'augmentation locale de la plasticité sous l'action de l'hydrogène. Par ailleurs, nous revenons sur la caractérisation expérimentale des effets de l'hydrogène sur le comportement en déformation uniaxiale de certains matériaux. Ce point met en lumière le fait que, dans la plupart des cas, les effets de l'hydrogène sur la contrainte d'écoulement ne vont pas dans le sens d'un adoucissement. Ainsi, au-delà des controverses autour des effets adoucissant ou durcissant de l'hydrogène, ce chapitre vise à rappeler que l'hydrogène en solution, en modifiant les interactions entre dislocations, affecte la contrainte d'écoulement de manière indirecte, et probablement à travers une multiplicité de mécanismes élémentaires.

Le deuxième chapitre traite des effets de vieillissement. Le vieillissement présente la particularité de mettre en évidence macroscopiquement les interactions dynamiques entre les dislocations mobiles et leur atmosphère de soluté. Au cours de ce chapitre, nous nous appuyons sur une modélisation du vieillissement statique afin d'orienter notre étude. Nous analysons les phénomènes de vieillissement en nous plaçant dans des conditions expérimentales « modèles » (matériaux de pureté contrôlée, hydrogénation en autoclave sous pression d'hydrogène, contrôle précis de la température d'essai). L'objectif de cette étude est d'évaluer la contrainte maximale d'épinglage des dislocations par leur nuage d'hydrogène grâce à des essais de vieillissement statiques. Par ailleurs, nous présentons des résultats qui illustrent les effets du transport de l'hydrogène par les dislocations sur la ductilité de l'alliage Ni-16Cr.

Au cours du troisième chapitre, nous étudions les effets de l'hydrogène sur les mécanismes de la plasticité. Nous examinons la nature des interactions entre l'hydrogène et les dislocations de type coin. Nous revenons sur les effets d'écrantage des interactions élastiques induits par l'hydrogène et sur la définition de l'indice d'écrantage qui en résulte. A partir de cette expression, nous revisitons les mécanismes de la plasticité en nous appuyant sur des modèles élastiques simplifiés de « type Friedel ». L'intérêt d'une telle modélisation réside

dans le fait qu'elle offre la possibilité d'analyser analytiquement les effets de l'hydrogène sur les propriétés des dislocations (énergie et tension de ligne) ainsi que sur les mécanismes d'interactions (mécanisme de multiplication) et de réactions entre dislocations (formation de jonctions).

Dans le dernier chapitre de ce mémoire nous revenons sur l'influence de l'hydrogène sur la contrainte d'écoulement des matériaux CFC. Pour ce faire, nous employons des matériaux modèles (nickel et Ni-16Cr), en particulier des monocristaux orientés pour glissement simple. Nous analysons les effets de l'hydrogène sur ces monocristaux en traction et en fatigue oligocyclique. Par ailleurs, nous comparons les manifestations macroscopiques de l'hydrogène en traction sur des éprouvettes polycristallines de nickel, de l'alliage Ni-16Cr et d'un acier inoxydable austénitique 316L. Nous analysons ces résultats expérimentaux au regard des phénomènes mis en lumière dans les chapitres II et III.

## **Bibliographie**

- [1] Hydrogen effects on materials behaviour and corrosion deformation interactions, édité par N. R. Moody, A. W. Thompson, R. Ricker, G. Was et R. H. Jones, H-CDI'2002 Jackson Lake Lodge, Wyoming, TMS, Warrendale, PA (2002).
- [2] F. Larché et J. W. Cahn, "The interactions of composition and stress in crystalline alloys", *Acta Metallurgica* (1985), 33, p. 331-357.
- [3] P. Sofronis, "The influence of mobility of dissolved hydrogen on the elastic response of a metal", *Journal of Mechanics and Physics of Solids* (1995), 43, p. 1385-1407.
- [4] P. Sofronis et H. K. Birnbaum, "Mechanics of the hydrogen-dislocation-impurity interactions-I. increasing shear modulus", *Journal of Mechanics and Physics of Solids* (1995), 43, p. 49-90.
- [5] J. P. Chateau, D. Delafosse et T. Magnin, "Numerical simulations of hydrogen-dislocation interactions in FCC stainless steels. Part I: hydrogen-dislocation interactions in bulk crystals", *Acta Materialia* (2002), 50, p. 1507-1522.
- [6] J. Friedel, *Dislocations*, Pergamon Press (1964).
- [7] G. De Wit et J. S. Koehler, "Interaction of dislocations with an applied stress in anisotropic crystals", *Physical Review* (1959), 116, p. 1113-1120.



**Chapitre I. :**  
**EFFETS DE L’HYDROGENE EN CORROSION SOUS**  
**CONTRAINTES ET CARACTERISATION DES**  
**INTERACTIONS HYDROGENE-PLASTICITE**



## **Introduction**

Le rôle l’hydrogène est avancé dans un certain nombre de modèles de Corrosion Sous Contrainte (CSC) en raison des similitudes observées entre les modes de rupture en CSC et ceux résultant de la Fragilisation Assistée par l’Hydrogène (FAH). Les modélisations de CSC et de FAH font ainsi appel à des séquences de mécanismes élémentaires communes (l’adsorption et l’absorption d’hydrogène monoatomique, la ségrégation et le traînage de l’hydrogène par les dislocations, la modification des interactions entre dislocations due à l’hydrogène). Beachem [1] a le premier suggéré que l’enrichissement en hydrogène en pointe de fissure favorise la déformation plastique. Depuis, plusieurs modèles ont été développés autour de cette notion d’adoucissement et de localisation de la déformation induite par l’hydrogène, notamment le modèle de FAH développé par Birnbaum et Sofronis [2] et le modèle de CSC de Magnin [3]. En outre, un certain nombre d’observations *in-situ* au MET environnemental [4, 5] sont venues étayer ces modèles en confirmant l’écrantage des interactions de paires sous l’action de l’hydrogène. Aussi, nombreux sont ceux qui s’attendent à en observer des manifestations expérimentales directes. Cependant, la plupart des essais de traction réalisés sur des matériaux hydrogénés conduisent non pas à une diminution mais à un accroissement sensible de la contrainte d’écoulement. Au-delà des controverses sur les effets adoucissant ou durcissant induits par l’hydrogène, il ne semble pas pertinent de vouloir appliquer directement à des lois de comportement macroscopiques des mécanismes intervenant entre deux dislocations. La contrainte d’écoulement des matériaux Cubiques à Faces Centrées (CFC) est en effet gouvernée par les interactions et réactions entre dislocations et non leur comportement individuel. L’objectif de notre étude est donc de développer une approche globale associant étroitement expériences critiques et modélisation des mécanismes élémentaires afin de lister les différentes contributions des interactions hydrogène-dislocations à la contrainte d’écoulement.

Dans ce premier chapitre, nous rappelons tout d’abord le rôle de l’hydrogène dans le processus de CSC afin d’illustrer l’importance des interactions entre l’hydrogène et la déformation dans la compréhension des mécanismes d’endommagement. Nous revenons ensuite sur la caractérisation expérimentale des interactions hydrogène-dislocations ainsi que sur la modification des interactions entre dislocations induite par l’hydrogène. Enfin, nous concluons ce chapitre par une revue synthétique des résultats expérimentaux sur les effets macroscopiques induits par l’hydrogène sur le comportement en déformation uniaxiale du fer, des aciers inoxydables et des alliages à base de nickel.

## **I.1 Hydrogène et mécanismes d'endommagement par Corrosion Sous Contrainte**

Pour un matériau donné, le processus de CSC est lié à l'application de sollicitations mécaniques dans un environnement tel qu'un phénomène de corrosion localisée pourra intervenir. En milieu aqueux, ce processus de corrosion correspond à la coexistence de réactions anodiques et cathodiques qui conduisent à une dissolution du métal ainsi qu'à la réduction de protons et/ou à la production de lacunes, suivant le couple matériau/milieu étudié [6]. Cette possible production d'atomes d'hydrogène en tête de fissure ainsi que les similitudes observées entre les faciès de rupture en CSC et en FAH confortent la thèse selon laquelle l'hydrogène joue un rôle important dans les mécanismes de CSC. Nous rappelons tout d'abord les propriétés et le rôle de l'hydrogène en CSC. Par la suite, nous présentons différents modèles de fragilisation induits par l'hydrogène. Enfin, nous terminons par la présentation du modèle de CSC développé à l'Ecole des Mines de St Etienne : le « Corrosion Enhanced Plasticity Model » [3]. Ce modèle présente la particularité de rendre compte de la synergie entre corrosion et déformation et place les interactions hydrogène-plasticité au cœur de son mécanisme. Tanguy [7, 8] a récemment démontré le rôle d'un autre type d'interactions hydrogène-plasticité pour caractériser la rupture intergranulaire des alliages base Al-5Mg en milieu NaCl 30g/l. Dans ce modèle, la plasticité contribue au mécanisme de fragilité par le transport de l'hydrogène vers les joints de grains et la création de sites de piégeage aux joints de grains.

### **I.1.1 Contribution de l'hydrogène au processus de CSC**

Dans ce paragraphe, nous rappelons tout d'abord quelques caractéristiques générales de l'hydrogène qui déterminent son comportement spécifique dans les métaux. Nous rappelons ensuite l'origine de l'hydrogène dans le processus de Corrosion Sous Contrainte.

#### **I.1.1.1 Propriétés déterminantes de l'hydrogène**

De part ses dimensions ( $r_H = 0,53 \text{ \AA}$ ), l'hydrogène entre en solution d'insertion dans les matériaux métalliques. A la température ambiante, les sites interstitiels privilégiés de l'hydrogène dans les structures cubiques à face centrées, CFC, sont les sites octaédriques [9]. Compte tenu de la taille des sites occupés ( $r_i = 0,19 \text{ \AA}$  dans les aciers austénitiques), l'hydrogène en solution solide provoque une dilatation isotrope du réseau. Ces considérations géométriques, mais également les propriétés électroniques de l'hydrogène lui confèrent un volume molaire partiel élevé ( $V^* = 2 \text{ cm}^3/\text{mol}$ . [10]). Ce volume représente la distorsion du réseau non contraint induite par une mole d'hydrogène interstitiel. La valeur élevée de cette

grandeur se traduit par une grande sensibilité de l’hydrogène à la présence de champs de contraintes hydrostatiques.

Les propriétés électroniques de l’hydrogène lui confèrent une faible solubilité. Cette propriété favorise la ségrégation de l’hydrogène sur les défauts microstructuraux énergétiquement plus favorables. Deux caractéristiques géométriques expliquent la mobilité très élevée de l’hydrogène dans les réseaux métalliques (supérieure de plus de 10 ordres de grandeur à celle des autres interstitiels). D’une part, sa petite taille lui confère un volume d’activation négligeable et, d’autre part, sa faible masse lui assure une fréquence de saut élevée entre sites interstitiels. Toutefois, elle reste beaucoup plus faible dans les CFC que dans les matériaux de structure Cubique Centrée (CC) présentant un empilement moins compact. Le coefficient de diffusion de l’hydrogène dans l’austénite est donné par [10] :

$$D \approx 4,35 \times 10^{-3} \exp\left(\frac{-12350 \times 4,184}{R T}\right) \quad (\text{I.1})$$

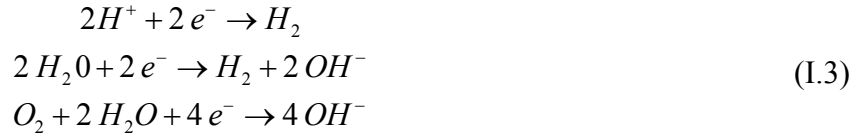
A la température ambiante, il est de l’ordre de  $2,5 \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{s}$ . L’hydrogène peut ainsi parcourir des distances suffisantes pour expliquer son rôle dans les mécanismes d’endommagement par CSC. Il est à noter que ce processus de diffusion de l’hydrogène peut être perturbé par la présence de défauts dans le réseau cristallin. Ces défauts jouent alors le rôle de court-circuits de diffusion ou de pièges pour l’hydrogène. Brass [11] a en particulier souligné l’existence de mécanismes de diffusion préférentielle le long des joints de grains dans du nickel pur ainsi que l’importance jouée par les dislocations dans le transport de l’hydrogène.

Ces quelques caractéristiques sont à l’origine de l’interaction préférentielle entre l’hydrogène et les défauts cristallins. De plus, Baranowski *et al.* [12] et Ulmer et Alstetter [13] ont montré qu’il est possible d’introduire une grande quantité d’hydrogène par chargement cathodique dans les aciers austénitiques. Ils estiment que l’hydrogène demeure en solution solide jusqu’à des concentrations de 15% atomique. Nous verrons par la suite que la ségrégation de l’hydrogène sur les dislocations peut modifier les propriétés individuelles des dislocations. La modification des interactions entre dislocations induite par l’hydrogène a non seulement des conséquences sur les mécanismes de CSC, mais influe aussi sur les mécanismes de plasticité des matériaux CFC.

#### I.1.1.2 Origine de l’hydrogène en Corrosion Sous Contrainte

Le processus de corrosion, caractéristique d’un couple matériau/milieu, résulte d’une réaction anodique de dissolution (I.2) couplée à une réaction cathodique, la réaction (I.3) par exemple.

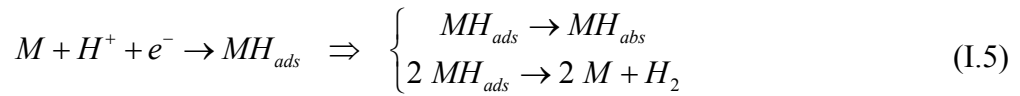




Chêne et Brass [10] notent que, dans tout milieu aqueux ou source de proton, cette réaction cathodique a une très forte probabilité de conduire à une décharge d'hydrogène. A ces réactions vient s'ajouter l'hydrolyse des cations mis en solution (I.4). Cette réaction libère des protons et conduit à la formation d'une couche passive.



Ces réactions conduisent alors à une production d'atomes d'hydrogène en fond de fissure ce qui favorise l'adsorption de l'hydrogène par le métal. Ce processus d'adsorption est d'autant plus marqué qu'il est facilité par la destruction locale du film protecteur par la déformation plastique. L'hydrogène ainsi adsorbé est pour partie absorbé par le métal, et pour partie se recombine sous forme d'hydrogène gazeux suivant la réaction suivante :



A potentiel cathodique, la dissolution en milieu aqueux conduit à un dégagement d'hydrogène. L'influence de la polarisation cathodique sur les mécanismes d'endommagement d'un acier inoxydable de type 321 dans LiCl à 143°C a été étudiée par Quiao *et al.* [14]. L'évolution du temps à rupture de ce matériau en fonction du courant cathodique appliqué est illustrée figure I-1. Cette courbe met en évidence l'existence d'un courant cathodique seuil, au-delà duquel le mécanisme de CSC laisse place à un mécanisme de fragilisation par l'hydrogène. Pour toute densité de courant inférieure à cette valeur critique, le temps à rupture augmente avec le courant cathodique à mesure que la dissolution anodique diminue. En revanche, au-delà de 10 A/m<sup>2</sup> de courant cathodique, il apparaît que le temps à rupture diminue avec le potentiel cathodique. Dans ce domaine, la quantité d'hydrogène absorbée est alors telle que le mécanisme de fissuration par l'hydrogène devient prépondérant. Il ressort donc que la polarisation cathodique, en favorisant les effets d'absorption et de dégagement d'hydrogène illustré par la réaction (I.5), peut conduire à des phénomènes de fragilisation gouvernés par l'hydrogène.

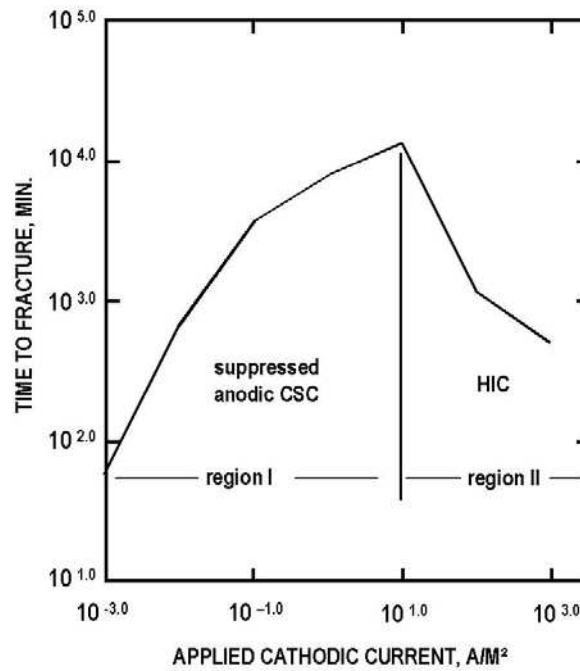


figure I-1. Influence du courant cathodique sur le temps à rupture à charge constante d'un acier austénitique de type 321 dans une solution de LiCl à 143°C. D'après Quiao et al. [14]

Pour autant, à potentiel libre, la contribution de l'hydrogène aux mécanismes de CSC ne peut être écartée. En effet, en milieu occlus, les conditions locales peuvent être très différentes de celles du milieu environnant. Dans le cas des aciers inoxydables en milieu chloruré, le confinement en pointe de fissure est tel qu'il conduit à une acidification localisée du milieu suivant le processus illustré figure I-2. Cette acidification, induite par l'hydrolyse des cations en solution, peut conduire à un endommagement par CSC assisté par l'hydrogène.

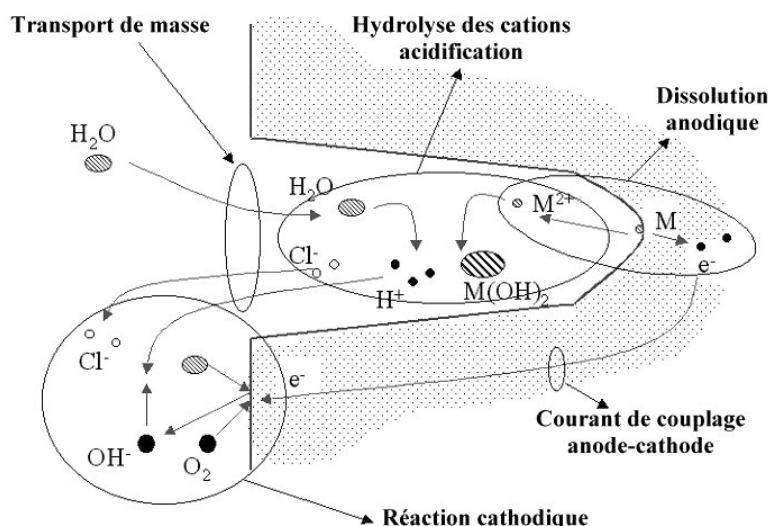


figure I-2. Illustration des réactions électrochimiques à l'origine de l'acidification en fond d'entaille d'un acier inoxydable en milieu chloruré. D'après Combrade [15].

Il apparaît donc que la dissolution anodique localisée constitue le point de départ du processus de CSC en favorisant la création d'un défaut critique qui exacerbe les effets de l'hydrogène à potentiel cathodique et/ou libre. Pour la CSC de l'alliage 600 en milieu primaire, Foct [16] montre que la polarisation cathodique de  $-320 \text{ mV}/E_0$  n'affecte pas le mécanisme d'amorçage des fissures. En revanche, la polarisation cathodique accélère considérablement la propagation d'un défaut préexistant. Il est à noter que cet effet de l'hydrogène sur la propagation des fissures initiées à potentiel libre a aussi été caractérisé dans le cas des aciers de pipeline en milieu NS4 [17] (122mg/l de KCl, 483 mg/l de  $\text{NaHCO}_3$ , 181 mg/l de  $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  et 131 mg/l de  $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ ). Enfin, la contribution de l'hydrogène a été mise en évidence expérimentalement pour de nombreux couples matériaux/milieus notamment dans les aciers inoxydables austénitiques de type AISI 316L en milieu  $\text{MgCl}_2$  [18], ainsi que dans les alliages 600 à base nickel en milieu PWR [16] et 718 en milieu  $\text{H}_2\text{SO}_4$  à potentiel cathodique [19] pour ne citer que des travaux effectués dans notre laboratoire. Wu et Dickson [20] confirment l'importance du rôle joué par l'hydrogène dans les mécanismes d'endommagement par CSC des aciers inoxydables AISI 316L et AISI 310s. Ces auteurs effectuent des essais de traction à l'air sur des éprouvettes pré-fissurées en milieu  $\text{MgCl}_2$  bouillant puis stockées à l'air. Ils observent alors des faciès de rupture typiques de FAH. Ils estiment alors que cette rupture différée est imputable à l'hydrogène absorbé au cours de la pré-fissuration en milieu  $\text{MgCl}_2$ .

### **I.1.2 Modèles de fragilisation induite par l’hydrogène**

Les mécanismes de FAH sont traditionnellement scindés en trois familles : rupture par formation d’une phase fragile (hydrure), rupture par diminution de la cohésion du matériau et rupture par augmentation locale de la plasticité. Dans ce paragraphe, nous nous focalisons sur les modèles liant les mécanismes de fragilisation par l’hydrogène aux phénomènes de transport par les dislocations. Nous ne développons donc ni le mécanisme de rupture intervenant dans les métaux où il y a précipitation d’un hydrure plus stable que la solution solide [21-24], ni les modèles basés sur la réduction des forces de cohésion induite par l’hydrogène [25-27]. Nous divisons cette présentation en deux parties en fonction des effets induits par l’hydrogène. Nous présentons tout d’abord le modèle développé par Lynch, relatif à la plasticité induite par l’hydrogène adsorbé. Nous décrivons ensuite un mécanisme basé sur l’augmentation de la plasticité induite par l’hydrogène, à savoir le modèle HELP (Hydrogen Enhanced Localised Plasticity) proposé par Birnbaum et Sofronis.

#### **I.1.2.1 Plasticité induite par l’hydrogène adsorbé**

Le modèle AIDE (Adsorption-Induced Dislocation-Emission) proposé par Lynch [28] s’appuie sur les similitudes observées entre les faciès de rupture obtenus en CSC, en FAH et en fragilisation par les métaux liquides, à savoir l’observation de microcavités. Un schéma de ce modèle est présenté figure I-3. Il repose sur un affaiblissement des liaisons atomiques en pointe de fissure par l’adsorption d’espèces chimiques présentes dans le milieu tel que l’hydrogène. En outre, l’hydrogène adsorbé favorise l’émission de dislocations supplémentaires en pointe de fissure dans deux plans symétriques. A l’activation du glissement assistée par l’hydrogène, vient alors s’ajouter la coalescence de microcavités en avant de la fissure. L’avancée de la fissure se produit le long du plan bissecteur aux deux plans de glissement activés. Ainsi, le glissement alterné suivant les plans de type  $\{111\}$  peut provoquer des ruptures suivant les directions  $\langle 110 \rangle$  de plans  $\{100\}$ . La diffusion ou le transport de l’hydrogène par les dislocations n’étant pas essentiels dans ce mécanisme, l’hydrogène adsorbé a pour effet de réduire l’émoussement de la fissure en localisant le glissement. La limitation principale de ce modèle est qu’il repose sur les similitudes observées entre des phénomènes présentant des cinétiques de rupture très différentes, de plusieurs ordres de grandeur.

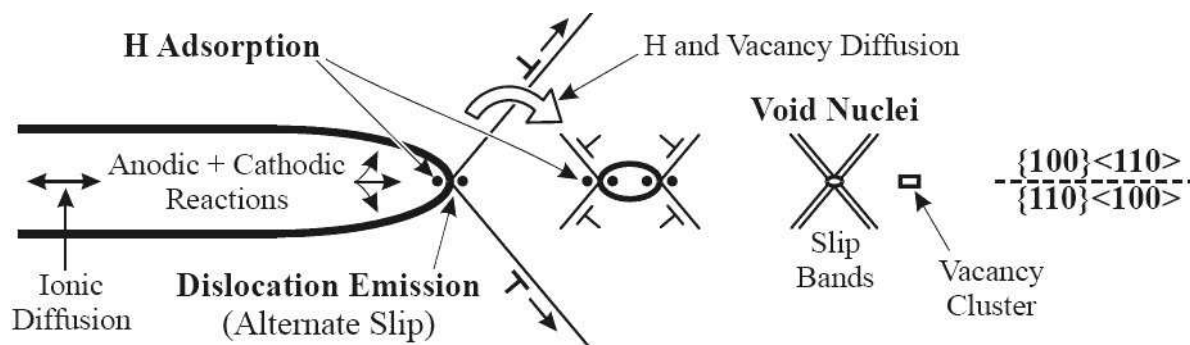


figure I-3. Modèle de la plasticité induite par l'hydrogène adsorbé AIDE, d'après Lynch [28].

### I.1.2.2 Hydrogen Enhanced Localized Plasticity (HELP)

Un certain nombre d'auteurs estiment que l'enrichissement en hydrogène en pointe de fissure favorise la déformation plastique. Beachem [1] suggère qu'en présence d'hydrogène, l'émission et la propagation des dislocations aient lieu pour des contraintes relativement faibles. Cette augmentation de la plasticité en avant de la fissure se traduit alors par une rupture ductile extrêmement localisée.

Plus récemment, Birnbaum et Sofronis [2] ont développé cette idée dans le cadre du modèle HELP, « Hydrogen Enhanced Localized Plasticity ». Ce mécanisme est principalement étayé par l'observation en microscopie électronique en transmission de la modification du comportement des dislocations sous l'action de l'hydrogène [4, 5]. Les auteurs de ce modèle estiment, à partir de ces observations, que l'hydrogène tend à accroître la « mobilité » des dislocations. La figure I-4 illustre l'influence d'une pression partielle de 6 kPa d'hydrogène sur le déplacement des dislocations dans un acier austénitique AISI 316. En outre, ces observations sont étayées par les travaux de Sirois et Birnbaum [29] sur les effets de l'hydrogène et du carbone sur les paramètres d'activation thermique du mouvement des dislocations dans le nickel. Pour ce faire, ces auteurs s'appuient sur des essais de relaxation isotherme de la contrainte et des mesures différentielles de température sur des éprouvettes « pures », des éprouvettes hydrogénés ( $C_H = 600$  ppm atomique), des échantillons dopés au carbone ( $C_C = 850$  ppm atomique) et enfin, des éprouvettes chargées en hydrogène et en carbone ( $C_H = 600$  ppm atomique et  $C_C = 700$  ppm atomique). Il ressort de leur étude que l'hydrogène, en réduisant l'aire d'activation du mouvement des dislocations dans le nickel et le nickel dopé au carbone, facilite le déplacement des dislocations. En revanche, il apparaît que le carbone tend à augmenter l'aire d'activation dans le nickel. Nous reviendrons en détail sur les observations au MET *in-situ* des effets de l'hydrogène sur le comportement des dislocations ainsi que sur la pertinence de l'emploi du terme « mobilité » dans le paragraphe I.2.2. Selon Birnbaum et Sofronis, cet effet résulte de la formation d'atmosphères d'hydrogène autour des dislocations. La modélisation par Sofronis [30] des interactions hydrogène-dislocations montre que la contribution du nuage d'hydrogène à la cission résolue

présente, au premier ordre, la même singularité en  $1/r$  que la contribution due aux dislocations seules mais de signe opposé et de plus faible amplitude. En conséquence, l’hydrogène écrante les interactions élastiques entre dislocations, ce qui se traduit par une diminution de la contrainte appliquée nécessaire au déplacement des dislocations. Nous reviendrons en détail sur cet aspect dans le chapitre III de ce mémoire. Une conséquence de cet effet d’écrantage réside dans la diminution des interactions répulsives entre dislocations ou entre dislocations et d’autres obstacles, ce qui conduit à une augmentation de la densité de dislocations dans les empilements.

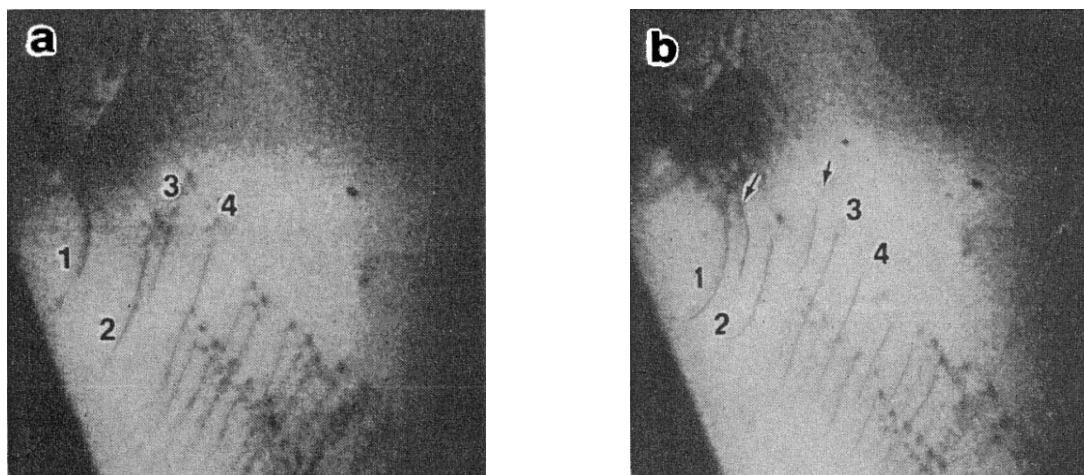


figure I-4. Effet de l’hydrogène sur la « mobilité » des dislocations dans un acier austénitique AISI 316 d’après Rozenak et al. [5]. a) Sous vide les positions des dislocations sont indiquées par les numéros 1 à 4. b) Sous une pression partielle de 6 kPa d’hydrogène, les flèches indiquent les nouvelles dislocations générées.

La pénétration de l’hydrogène en pointe de fissure tend donc à favoriser la localisation de la déformation. En outre, le transport de l’hydrogène par les dislocations facilite sa diffusion en volume le long des lignes de glissement. Les interactions hydrogène-dislocations se traduisent ainsi par l’extrême localisation du glissement en pointe de fissure. La rupture, à l’échelle microscopique, est ductile et se produit par cisaillement dans ces régions adoucies. La propagation des fissures se fait alors par succession de cisaillements le long des plans de glissement.

Dans ce modèle, Birnbaum et Sofronis accordent une place prépondérante au couple hydrogène-dislocations qui est à l’origine du mécanisme d’endommagement. Ils mettent en évidence l’influence fondamentale de l’hydrogène sur le comportement des dislocations et donc sur les mécanismes de plasticité par l’intermédiaire de l’écrantage des interactions de paires entre dislocations. Ce modèle prédit une rupture par cisaillement résultant d’une localisation extrême de la déformation qui nécessite des concentrations locales très élevées. En conséquence, un tel mécanisme devrait se traduire par l’existence d’un seuil marqué pour

l'apparition de ce phénomène de rupture, notamment d'un potentiel cathodique critique. Or, des résultats tels que ceux de Quiao *et al.* [14] montrent une transition progressive entre les régions I et II définies sur la figure I-1.

### I.1.3 Mécanisme de rupture en Corrosion Sous Contrainte assistée par l'hydrogène

Parmi les différents modèles de CSC faisant appel aux mécanismes d'interaction entre la corrosion et la déformation, nous nous focalisons tout particulièrement sur le « Corrosion Enhanced Plasticity Model » (CEPM) proposé par Magnin [3]. Ce modèle s'applique aux matériaux de structure CFC et permet de décrire le caractère discontinu et cristallographique des faciès de rupture en CSC. Les différentes étapes constitutives de ce mécanisme sont illustrées sur la figure I-5.

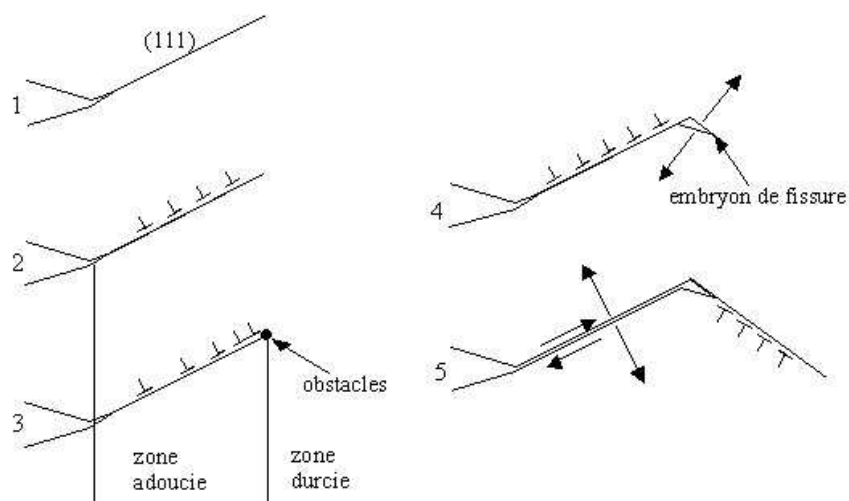


figure I-5. Schéma des étapes constitutives du « Corrosion Enhanced Plasticity Model » d'après Magnin *et al.* [3].

Ce mécanisme se décompose alors comme suit :

1 – La déformation plastique en pointe de fissure génère des marches de glissement qui dépassent la surface provoquant une dissolution localisée dans ces plans de glissements non protégés.

2 – Les produits de la dissolution (lacunes et hydrogène monoatomique) augmentent la plasticité en pointe de fissure. La déformation se localise alors sur les plans de glissement de type  $\{111\}$  à l'extrême pointe de fissure. L'émoussement est alors réduit, ce qui limite l'ouverture de la fissure.

3 – En avant de la fissure, les dislocations émises s'empilent sur des obstacles microstructuraux (impuretés, joints de grain ou plus généralement jonctions sessiles). Il se forme alors une interface mobile entre une zone dite « adoucie » en fond de fissure dans

laquelle le glissement est facilité et localisé, et une zone « durcie ». Les dislocations émises en pointe de fissure vont se propager rapidement dans la zone « adoucie » et s’empiler sur la zone « durcie ».

4 – La formation d’empilements provoque une concentration de contraintes et la valeur du  $k_{Ic}$  local peut être atteinte en tête d’empilement. Les effets conjugués des concentrations de contraintes et de la diminution de l’énergie nécessaire à la décohésion provoquent la formation d’un embryon de fissure sur l’obstacle.

5 – L’hydrogène ségrégué dans le plan de glissement diminue l’énergie de cohésion du plan  $\{111\}$ . La rupture se produit alors le long de ce plan entre l’embryon de fissure et la fissure principale.

6 – Le processus peut alors se répéter sur le plan symétrique provoquant une rupture alternée le long des facettes  $\{111\}$  reproduisant la morphologie de fissuration en « zigzag ».

Le CEPM présente l’intérêt d’apporter un éclairage complet sur le mécanisme d’endommagement en CSC en rendant compte de la cristallographie des faciès de rupture observés. Dans ce modèle, les interactions hydrogène-dislocations jouent un rôle prépondérant dans le mécanisme de rupture. Une modélisation efficace de la CSC repose donc sur une analyse quantitative des mécanismes élémentaires liés à l’hydrogène. Si le travail de Chateau [31] permet la quantification des mécanismes de rupture liés à l’hydrogène, il reste à évaluer les effets de l’hydrogène sur la plasticité des matériaux de type CFC.

## **I.2 Interactions hydrogène-dislocations**

Dans le paragraphe précédent, nous avons vu que la ségrégation de l’hydrogène sur les défauts microstructuraux est non seulement favorisée par sa faible solubilité mais aussi par sa grande mobilité et son grand volume molaire partiel qui le rend sensible aux champs de contraintes. De plus, nous avons rappelé l’origine et le rôle de l’hydrogène dans différents mécanismes d’endommagement assisté par l’hydrogène. Il est ressorti de ces modèles, en particulier du modèle proposé par Birnbaum et Sofronis et de celui de Magnin, que le rôle des interactions hydrogène-dislocations est au cœur des mécanismes de fragilisation. Ceux-ci reposent notamment sur l’écrantage des interactions de paires. Dans cette partie, nous nous penchons sur la caractérisation des interactions entre l’hydrogène et les dislocations. Nous examinons tout d’abord le rôle des dislocations dans le transport de l’hydrogène. Puis nous décrivons l’influence de l’hydrogène sur le comportement des dislocations à l’échelle microscopique. Pour conclure ce paragraphe, nous analysons les manifestations macroscopiques des interactions hydrogène-dislocations.



### I.2.1 Rôle des dislocations dans le transport de l'hydrogène

L'hydrogène interagit avec les dislocations qui sont des sites de piégeage. Le piégeage de l'hydrogène par les dislocations a pu être observé expérimentalement par autoradiographie du tritium sur des aciers inoxydables austénitiques par Chêne *et al.* [32]. Une mise en évidence indirecte du phénomène de piégeage est donnée par la diminution du coefficient de diffusion apparent lorsque le matériau est préalablement déformé plastiquement [33]. La particularité du piégeage de l'hydrogène sur les dislocations réside dans le fait que ces pièges sont mobiles et peuvent donc assister le mécanisme de diffusion de l'hydrogène. L'importance du rôle de ces pièges mobiles dans le transport de l'hydrogène a été suggérée par Bastien et Azou [34] dans les années 50. Dans les années 70, ce mécanisme de transport a été directement mis en évidence par Donovan [35]. Cette caractérisation a été effectuée par mesure du flux de désorption du tritium préintroduit dans des éprouvettes de traction.

Récemment, de nouvelles observations conduites par Chêne et Brass [36-38] ont permis de quantifier ce processus. L'évolution de la quantité de tritium désorbé au cours d'un essai de traction réalisé sur un monocristal de superalliage à base de nickel [37] est représentée figure I-6.

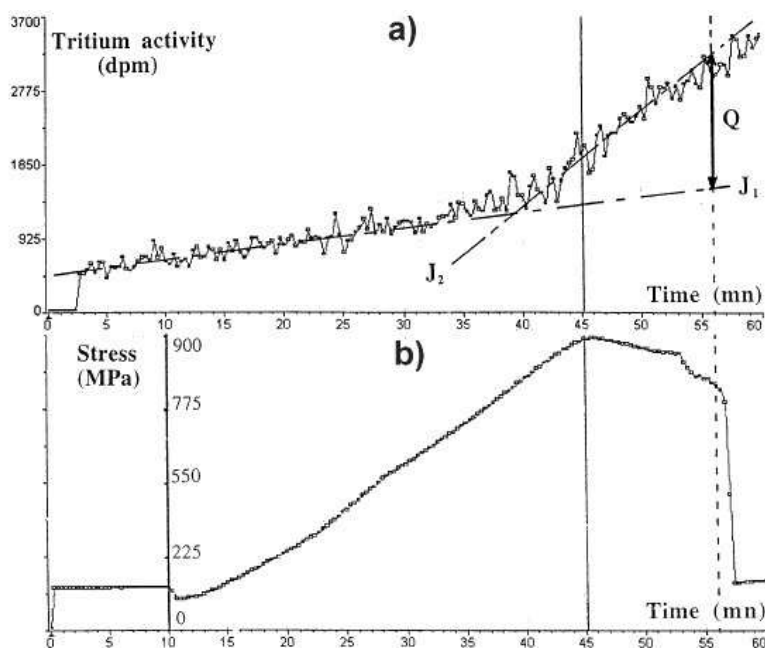


figure I-6. Mesure de la quantité de tritium désorbé à 293K lors d'un essai de traction ( $\dot{\epsilon} = 1,5 \times 10^{-4} \text{ mm.s}^{-1}$ ) interrompu pour  $\epsilon = 2,3\%$  sur monocristal de superalliage à base de nickel orienté  $\langle 100 \rangle$ . a) Quantité de tritium désorbé, mesurée en dpm (désintégrations par minute), en fonction du temps. b) Courbe de traction du monocristal donnée en fonction du temps. D'après Chêne et Brass [37].

Cette étude met en évidence que le flux de tritium désorbé augmente de manière continue mais faiblement durant les 40 premières minutes correspondant au domaine élastique. En revanche dans le domaine plastique, Chêne et Brass observent que la cinétique de désorption est de l’ordre de cinq fois supérieure à celle correspondant au domaine élastique. De plus, ces essais leur permettent d’estimer la quantité d’atomes de tritium libérés durant la déformation. Ils estiment qu’environ 50 atomes de tritium sont transportés par vecteur de Burgers émergeant à la surface.

**Les dislocations constituent des sites privilégiés de piégeage de l’hydrogène et présentent la particularité de faciliter son transport.**

## **I.2.2 Manifestation microscopique des interactions hydrogène-dislocations**

Après avoir caractérisé la ségrégation et le transport de l’hydrogène par les dislocations, nous allons examiner les effets de l’hydrogène sur le comportement des dislocations. Pour ce faire, nous allons principalement nous appuyer sur les travaux de Ferreira, Robertson et Birnbaum [39-41]. Leur analyse des effets de l’hydrogène sur le comportement des dislocations est rendue possible par l’utilisation d’un microscope électronique en transmission *in-situ* sous pression partielle d’hydrogène. Nous divisons l’analyse de leurs résultats en deux parties, l’une consacrée aux effets de l’hydrogène sur le mouvement des dislocations, et l’autre autour de la probabilité de glissement dévié.

### **I.2.2.1 Mouvement des dislocations**

La caractérisation des effets de l’hydrogène sur le mouvement des dislocations est principalement à mettre au crédit des travaux de l’équipe de Robertson et Birnbaum [4, 5, 40]. L’étude de l’influence d’une atmosphère d’hydrogène sur le comportement des dislocations est effectuée à l’aide d’un MET environnemental. A partir d’observations menées sur des matériaux de structures différentes (CFC, CC ou HCP), ils estiment que l’hydrogène augmente la « mobilité » des dislocations et ce, quelle que soit la nature des dislocations. La figure I-4 illustre les effets de l’hydrogène sur déplacement des dislocations dans un acier austénitique AISI 316. Une autre manifestation des modifications des interactions entre dislocations induite par l’hydrogène réside dans le comportement des empilements de dislocations. Ferreira *et al.* [40] ont analysé l’influence de la pression partielle d’hydrogène sur un arrangement de dislocations bloquées sur un joint de grain dans un acier inoxydable AISI 310s. Ils mettent en lumière le fait que plus la pression partielle d’hydrogène augmente plus la distance de séparation entre les dislocations diminue. La figure I-7 a) illustre le déplacement des dislocations induit par l’hydrogène. Cette image correspond à la

superposition de la situation observée sous vide (en noir) et de l'effet d'une pression partielle de 95 torr d'hydrogène (en blanc). Ces auteurs notent que ce processus requiert une pression partielle d'hydrogène supérieure à 70 torr pour être opérant, comme le montre la figure I-7 b).

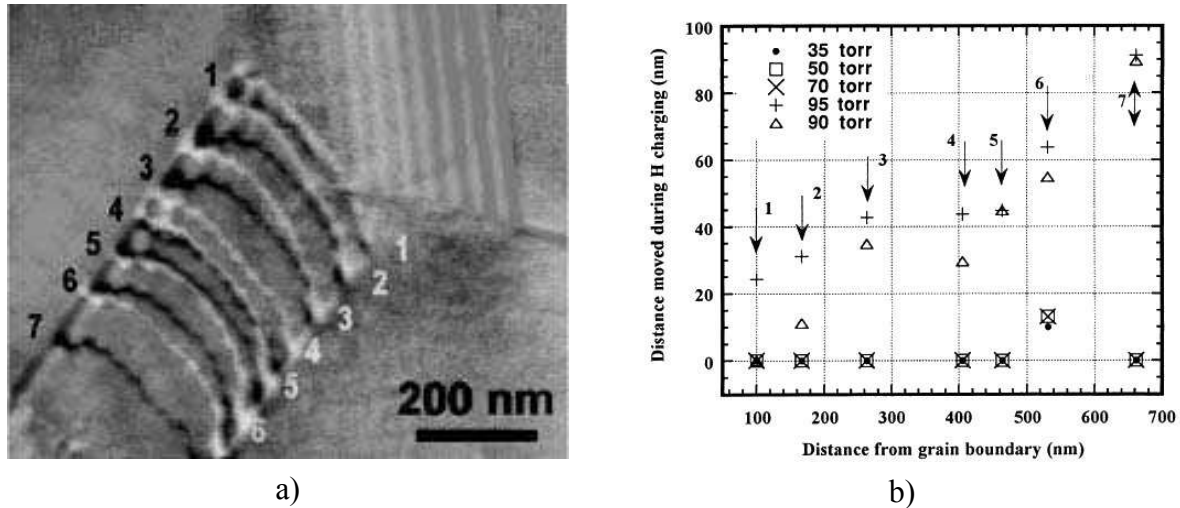


figure I-7. Effet de l'hydrogène sur la distance séparant les dislocations dans un empilement sur un joint de grain dans un acier austénitique AISI 310s d'après Ferreira *et al.* [40]. a) Comparaison de la position des dislocations en l'absence d'hydrogène et sous une pression partielle d'hydrogène de 95 torr. En noir est représenté l'empilement de sept dislocations, numérotées de 1 à 7, en l'absence d'hydrogène. La position de ces dislocations en présence d'hydrogène a été superposée en blanc. b) Evolution du déplacement des dislocations par rapport au joint de grain en fonction de la pression partielle en hydrogène.

En revanche, la suppression de la pression d'hydrogène dans l'enceinte ne se traduit pas par un retour systématique des dislocations à leur position initiale. En effet, dans le cas de l'acier austénitique AISI 310s, le déplacement des dislocations assisté par l'hydrogène est irréversible. En revanche, Ferreira *et al.* montrent que, dans le cas de l'aluminium, le déplacement des dislocations peut être complètement contrôlé par l'évolution de la pression partielle d'hydrogène. La diminution de la pression d'hydrogène s'accompagne en effet d'un retour des dislocations vers leur position initiale. Ces auteurs considèrent que ces observations, en particulier les effets sur la formation d'empilements denses illustrés par la figure I-7, constituent de parfaites illustrations du mécanisme d'écrantage des interactions de paires induit par l'hydrogène constitutif du modèle développé par Birnbaum et Sofronis [2]. En outre, ces expériences mettent en lumière un point clef du mécanisme CEP, à savoir le fait que l'hydrogène favorise la formation d'empilements denses. En ce qui concerne la réversibilité du mouvement des dislocations en fonction de la pression partielle d'hydrogène dans l'enceinte, Ferreira *et al.* attribuent cet écart de comportement à la force d'épinglage des

atomes de soluté sur les dislocations. Ainsi, ils estiment que la force de répulsion entre dislocations lorsque l’hydrogène a été retiré de l’enceinte n’est pas suffisante pour vaincre les effets induits par l’épinglage contrairement au cas de l’aluminium qui, en outre, présente la particularité de contenir une plus faible quantité d’impuretés. Nous pouvons ajouter qu’une friction de réseau due à l’ordre à courte distance n’est pas à exclure dans l’analyse de la différence de comportement entre l’aluminium et l’acier austénitique AISI 310s.

Revenons sur la notion d’augmentation de la « mobilité » des dislocations assistée par l’hydrogène. Pour déplacer une dislocation par glissement, la contrainte appliquée doit franchir un seuil qui dépend de la structure du réseau cristallin : la friction de réseau ou contrainte de Peierls-Nabarro. A basse température, la mobilité des dislocations d’un grand nombre de matériaux est contrôlée par la friction de réseau. La valeur de ce seuil est conditionnée par la structure du cœur des dislocations et en particulier par la « largeur » des dislocations. La contrainte de Peierls-Nabarro est alors d’autant plus basse que la dislocation est étendue, c’est à dire que le déplacement atomique autour de la dislocation est réparti sur un grand nombre de plans. En conséquence, pour les métaux CC, la friction de réseau est relativement élevée à basse température, compte tenu de la dissociation des dislocations vis sur plusieurs plans sécants. En revanche, dans le cas des matériaux de structure compacte, à liaisons inter-atomiques peu dirigées, la friction de réseau est faible. Le mouvement des dislocations dans un cristal CFC n’est donc pas gouverné par la friction mais par le franchissement d’obstacles de nature extrinsèque. Au regard de ce rappel, il nous apparaît intéressant de reconsidérer les observations de Rozenak *et al.* [5], illustrées par la figure I-4. Il nous semble que cette augmentation de la mobilité des dislocations ne correspond pas d’une diminution de la force de friction dans la mesure où celle-ci est négligeable dans le cas des matériaux CFC. Cet effet pourrait alors s’expliquer par le fait que l’hydrogène facilite le désancrage des dislocations sur les obstacles extrinsèques. En outre, ces considérations ne prennent en compte que des dislocations rectilignes et négligent le fait que ces segments de dislocations puissent appartenir à des boucles de dislocations. Or, les boucles qui sont émises par une même source vont se suivre ce qui aboutit à la création de dislocations glissant les unes à la suite des autres, c’est à dire dans une configuration similaire à celle observée sur la figure I-4. Dans cette optique, les effets observés sur la « mobilité » des dislocations illustrent la diminution de la force d’expansion des boucles de dislocations en présence d’hydrogène. En outre, il apparaît sur cette image que de nouvelles dislocations ont été créées ce qui traduit le fait que l’hydrogène favorise aussi la multiplication.

**Il ressort de ces observations au MET *in-situ* sous pression partielle d’hydrogène que l’hydrogène tend à favoriser le déplacement des dislocations et la formation d’empilements denses.**

## I.2.2.2 Glissement dévié

A l'aide d'un MET environnemental, Ferreira, Robertson et Birnbaum ont aussi visualisé les effets de l'hydrogène sur les mécanismes de glissement des dislocations. Dans les matériaux CFC, la dissociation des dislocations parfaites, de type  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle$  en partielles de type Shockley bordant un ruban de faute d'empilement minimise l'énergie du système. Le glissement dévié d'une telle dislocation nécessite alors la recombinaison de ces partielles en une dislocation parfaite. La largeur du ruban de faute séparant les partielles est donc une donnée prépondérante dans le mécanisme de recombinaison. Plus cette distance est élevée et plus le glissement dévié est défavorisé. Ferreira *et al.* [39] ont examiné l'influence de l'hydrogène sur le comportement de nœuds triples étendus d'un acier inoxydable AISI 310s. L'allure d'un nœud triple sous vide et sous une pression partielle de 40 torr de  $H_2$  est illustrée figure I-8. Il apparaît que le nœud s'élargit significativement sous l'action de l'hydrogène, c'est à dire que l'hydrogène tend à accroître la répulsion existante entre les dislocations partielles le constituant. A partir de la mesure des rayons de courbure du nœud, ils estiment alors qu'une pression partielle d'hydrogène de 40 torr provoque une diminution de l'ordre de 20% de l'énergie de défaut d'empilement de cet acier. Ces observations mettent en évidence le fait que l'hydrogène, en augmentant la distance de séparation les partielles, rende le travail de recombinaison plus difficile et inhibe ainsi le glissement dévié. Nous reviendrons en détail sur ces points dans le chapitre III qui est consacré à la modélisation des effets de l'hydrogène sur les mécanismes élémentaires de la plasticité.

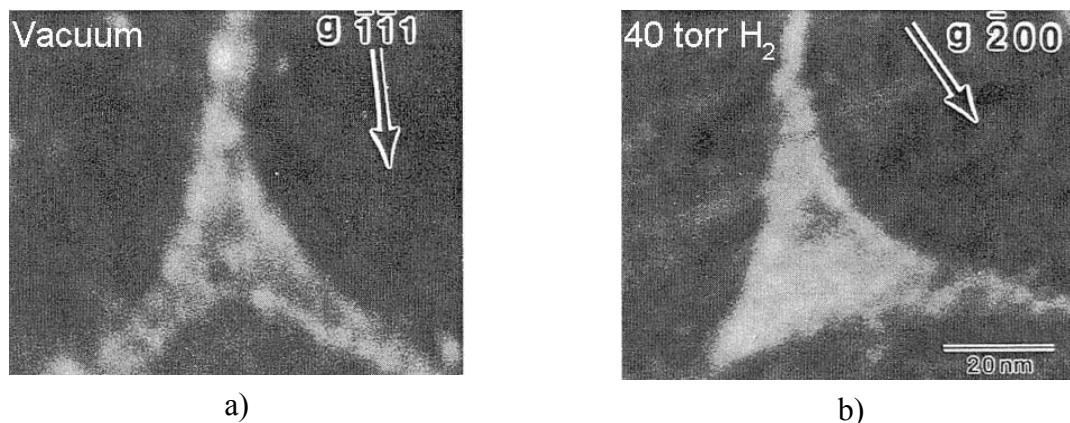


figure I-8. Influence de l'hydrogène sur la géométrie d'un nœud triple dans un acier inoxydable AISI 310s. a) Sous vide. b) Sous une pression partielle d'hydrogène de 40 torr.

Cette équipe a aussi étudié l'influence de l'hydrogène sur le mécanisme de glissement dévié dans l'aluminium [41]. Lors de ces essais, Ferreira *et al.* ont réussi à bloquer le processus en imposant une pression partielle d'hydrogène de 85 torr. Après avoir diminué cette pression à 16 torr, le mécanisme est réactivé et les dislocations peuvent à nouveau

dévier. Cette étude illustre donc le rôle inhibiteur que peut jouer l'hydrogène sur le mécanisme de glissement dévié.

**L'observation directe du comportement des dislocations montre que l'hydrogène est un frein au glissement dévié, ce qui devrait favoriser le confinement des dislocations dans leur plan de glissement.**

### **I.2.3 Manifestation macroscopique des interactions hydrogène-dislocations**

Après avoir caractérisé le rôle des dislocations dans le transport de l'hydrogène et visualisé l'influence de l'hydrogène sur le comportement des dislocations, nous passons aux manifestations macroscopiques des interactions hydrogène-dislocations. Nous examinons tout d'abord l'influence de l'hydrogène sur la planéité du glissement puis nous décrivons une manifestation macroscopique des interactions hydrogène-dislocations mobiles, à savoir la présence d'instabilités sur les courbes contrainte-déformation.

#### **I.2.3.1 Planéité du glissement**

Dans la partie précédente, nous avons vu que l'hydrogène peut bloquer le processus de glissement dévié des dislocations. La conséquence de cet effet est que l'hydrogène doit favoriser le glissement plan. Un certain nombre d'équipes ont étudié l'influence de l'hydrogène sur le caractère du glissement notamment dans des aciers inoxydables austénitiques [42], dans du nickel [43] ou des superalliages à base nickel [44]. Pour ce faire, ils ont comparé les lignes de glissement observées en surface de matériaux chargés ou non en hydrogène, et il ressort de toutes ces études que l'hydrogène favorise le glissement plan. Les résultats d'Abraham et Altstetter [42], présentés figure I-9, illustrent les effets de l'hydrogène sur les lignes de glissement d'un acier austénitique inoxydable AISI 310s. Ces observations sont effectuées après rupture sur les faces d'éprouvettes non chargées et hydrogénées par chargement cathodique. En outre, ces auteurs ont analysé l'influence de la teneur en hydrogène sur l'aspect des lignes de glissement. Ils ont ainsi réalisé des observations sur des éprouvettes non-hydrogénées ainsi que sur des échantillons contenant 0,18% et 2,7% atomique d'hydrogène.

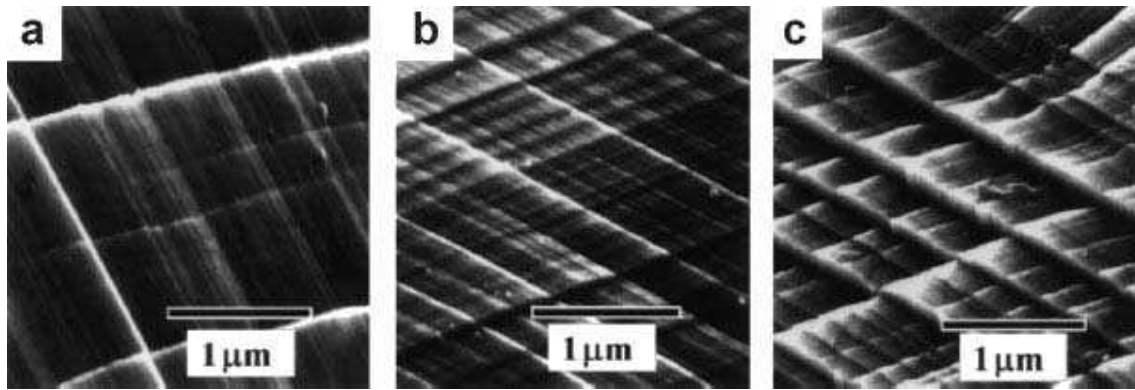


figure I-9. Observation post mortem des surfaces latérales d’éprouvettes d’acier inoxydable AISI 310s ayant subi un essai de traction à la température ambiante et à une vitesse de déformation de  $10^{-5} s^{-1}$ . a) Echantillon non chargé. b) et c) Eprouvettes chargées en hydrogène respectivement à 0,18% atomique et 2,7% atomique. D’après Abraham et Altstetter [42].

Il ressort de ces observations que l’hydrogène rend les lignes de glissement plus grossières et rectilignes. Ces auteurs notent aussi que plus la teneur en hydrogène est importante et plus la hauteur des marches de glissement s’accroît. Cette tendance à la localisation du glissement a aussi été confirmée par des observations en MET sur des Inconel 600 et 800 par Engelmann *et al.* [45].

**L’hydrogène induit une planéité accrue et une plus forte localisation du glissement.**

#### I.2.3.2 Instabilités plastiques

Les interactions soluté-plasticité peuvent aussi se manifester macroscopiquement par une hétérogénéité de la déformation plastique. Les courbes de traction présentent alors des décrochements associés à la propagation de fronts de déformation plastique en surface de l’éprouvette. Cottrell et Bilby [46] ont, les premiers, attribué l’origine de ces instabilités aux interactions dynamiques entre nuages d’impuretés et dislocations. On recense deux types d’instabilités :

- les unes sont caractérisées par un crochet de traction suivi d’un plateau au cours duquel se développent des bandes de Lüders,
- les autres sont identifiables par la présence de décrochements répétés. Cet écoulement plastique irrégulier est appelé effet Portevin-Le Chatelier (PLC) et se caractérise par une déformation par bandes successives.

Dans les années 60, l’existence du phénomène PLC a été caractérisée dans du nickel chargé en hydrogène par Smith et ses collaborateurs [47-49], puis analysée en détail dans les

années 70 par Combette et Grihlé [50]. Ces études ont mis en évidence l'influence de la température et de la vitesse de déformation sur le domaine d'existence et l'allure des instabilités observées. La figure I-10 permet de constater les effets de la température sur les conditions d'apparition et de disparition du phénomène PLC dans un monocristal de nickel chargé en hydrogène. Les interactions dynamiques entre dislocations et atomes de soluté se traduisent non seulement par l'hétérogénéité de la déformation, mais aussi par des effets sur les propriétés mécaniques des matériaux. Il apparaît ainsi que, dans le domaine d'existence des instabilités, ces interactions se manifestent par un effet durcissant. D'autre part, en deçà du domaine du PLC, toute interruption de l'essai de traction suivie d'un maintien à faible charge se traduit, sur la courbe contrainte-déformation, par la présence d'un crochet de traction à la remise en charge. Le chapitre II de ce mémoire est consacré à l'étude du phénomène de vieillissement dans le cas du nickel et d'un alliage nickel 16% massique de chrome hydrogénés.

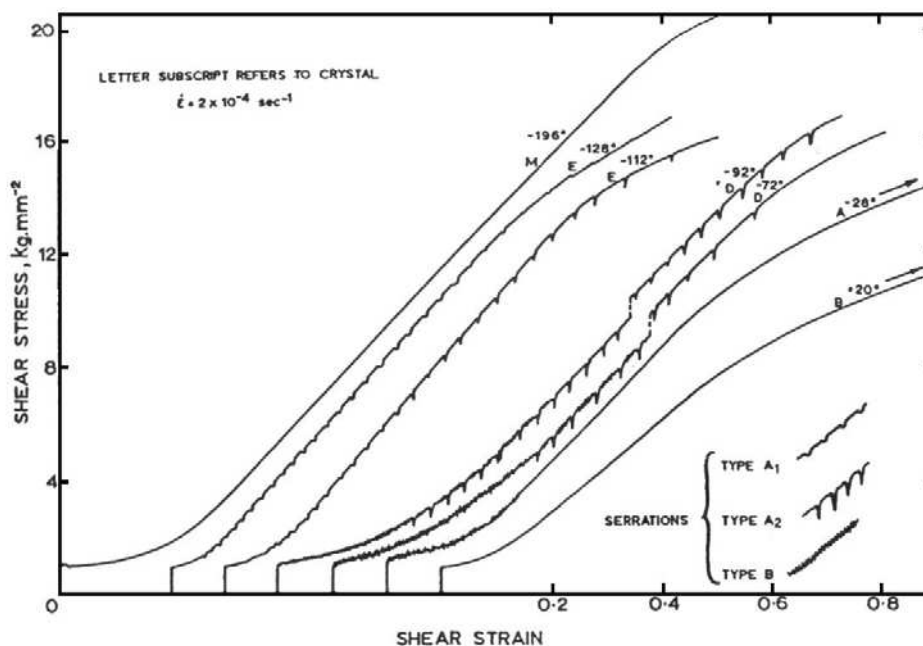


figure I-10. Observation d'instabilités de type Portevin-Le Chatelier dans un monocristal de nickel sur des courbes contraintes déformations pour différentes températures avec  $\dot{\epsilon} = 2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ . D'après Windle et Smith [49].

Récemment, Yagodzinsky et al. [51] ont analysé l'influence de l'hydrogène sur des monocristaux d'un acier inoxydable austénitique 18Cr-16Ni-10Mn orientés pour glissement simple. Pour ce faire, ils ont effectué des essais de traction à la température ambiante à une vitesse de déformation de  $10^{-4} \text{ s}^{-1}$ . L'hydrogénation est effectuée par chargement cathodique et conduit à une concentration en hydrogène de 0,7% atomique. La courbe de traction présente alors un pic de traction suivi d'un palier au cours duquel le corps de l'éprouvette est parcouru



par des bandes de Lüders, que le matériau soit chargé ou non en hydrogène. La figure I-11 illustre la présence et l'aspect de ces bandes. Il ressort que les limites des bandes de Lüders en présence d'hydrogène sont nettes et ils constatent l'absence de lignes de glissement en avant de ces bandes. En revanche, en l'absence d'hydrogène, le contour des bandes est diffus et de nombreuses lignes de glissement peuvent être observées sur toute la surface de l'éprouvette. De plus, l'analyse de la surface des échantillons, réalisée par AFM, montre que l'hydrogène accroît considérablement la localisation du glissement au sein des bandes. La figure I-11 c) illustre le relief des lignes de glissement de l'échantillon non chargé alors que l'image d) correspond au cas de l'échantillon contenant 0,7% atomique d'hydrogène.

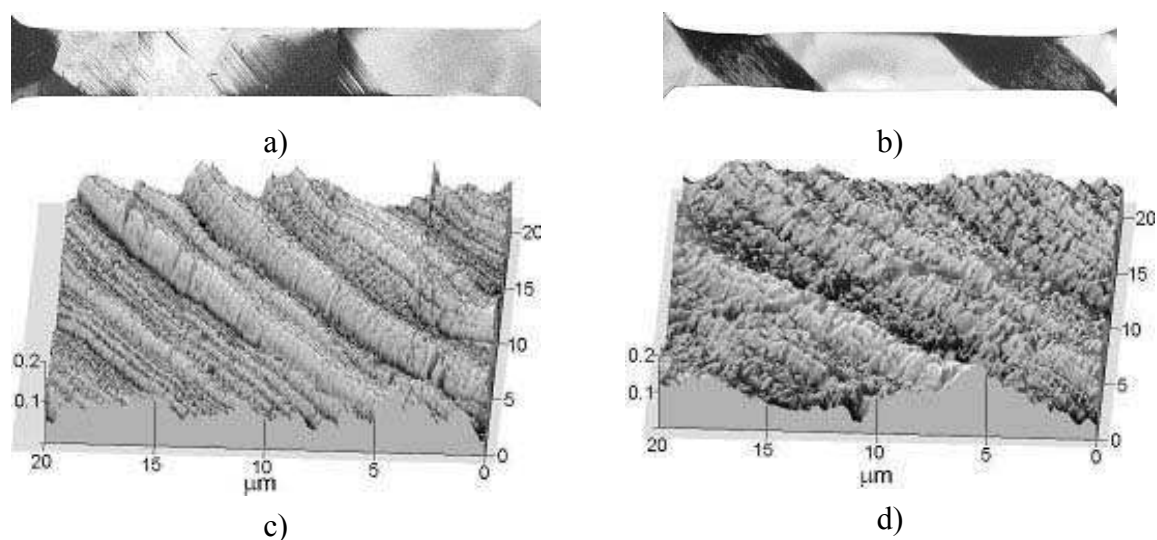


figure I-11. Apparition de bandes de Lüders en surface d'un monocristal d'un acier inoxydable austénitique 18Cr-16Ni-10Mn déformé à 5% d'après Yagodzinskyy et al. [51] dans le cas : a) d'une éprouvette non chargée et b) pour une concentration en hydrogène de 0,7% atomique.

Analyse topographique des lignes de glissements dans les bandes de Lüders par AFM pour : c) l'échantillon non chargé et d) l'éprouvette hydrogénée.

**Dans un domaine donné de température et de vitesse de déformation, les interactions dynamiques hydrogène-dislocations mobiles peuvent se manifester par l'apparition d'instabilités de type Portevin-Le Chatelier. Il ressort de l'observation de bandes de Lüders, présentes dans des monocristaux d'acier inoxydable austénitique hydrogénés ou non, que l'hydrogène favorise la localisation de la déformation.**

### **I.3 Effets de l’hydrogène sur la contrainte d’écoulement : durcissement ou adoucissement ?**

Les modèles d’endommagement de type HELP et CEPM, présentés en début de chapitre, s’appuient sur l’écrantage des interactions de paires pour expliquer l’augmentation de la plasticité induite par l’hydrogène. A titre d’exemple, une étape fondamentale du mécanisme CEPM (étape 4 de la figure I-5), qui implique la formation d’empilements denses de dislocations, résulte directement de ces interactions hydrogène-dislocations. Cet effet d’écrantage est étayé par l’analyse du comportement individuel des dislocations en présence d’hydrogène (augmentation de leur « mobilité », formation d’empilements plus denses) ainsi que par des observations indirectes (planéité du glissement accrue). Si l’emploi du terme « softening », par les tenants du modèle HELP, peut paraître adéquat pour décrire le mécanisme d’écrantage des interactions de paires à l’échelle locale, il entretient une certaine confusion autour des effets macroscopiques de l’hydrogène. En effet, la plupart des essais de traction effectués sur des aciers austénitiques ou des alliages de nickel chargés en hydrogène conduisent à une contrainte d’écoulement sensiblement accrue par rapport à celle des matériaux « purs », et non à un adoucissement. Cependant, l’essentiel des discussions sur la validité de ces modèles porte sur la transposition directe de ces mécanismes microscopiques à l’échelle macroscopique, alors que la contrainte d’écoulement est gouvernée par les mécanismes de réactions entre dislocations et non leur comportement individuel. L’objet de ce paragraphe n’est donc pas de reprendre le débat autour des effets adoucissant ou durcissant de l’hydrogène, mais d’analyser les conditions qui conduisent à ces effets. Aussi, nous présentons, en synthétisant analyses et observations, les effets macroscopiques de l’hydrogène sur le comportement de trois types de matériaux : le fer, les aciers austénitiques et enfin le nickel et ses alliages.

#### **I.3.1 Fer**

Au cours des années 70, plusieurs équipes ont étudié les effets de l’hydrogène sur les propriétés mécaniques du fer. La majorité des essais effectués sur du fer « pur » mettaient en évidence l’effet durcissant de l’hydrogène. Au-delà des controverses sur les effets adoucissant ou durcissant induits par l’hydrogène, ces travaux ont mis en évidence le fait que le degré de pureté des matériaux utilisés constituait un élément déterminant dans la compréhension des effets de l’hydrogène [52]. Il est en effet apparu que la présence d’impuretés affectait considérablement la solubilité ainsi que la diffusion de l’hydrogène dans le fer. Matsui *et al.* [53-55] ont étudié les effets de l’hydrogène sur les propriétés mécaniques du fer en fonction de son degré de pureté. Au cours de cette étude, ils ont accordé une attention particulière au chargement cathodique en hydrogène afin d’éviter tout endommagement de la

surface ou production de dislocations. Il est à noter que la particularité d'une partie de ces essais [53] réside dans le fait que les chargements en hydrogène sont effectués au cours de l'essai de traction. L'influence de l'hydrogène sur la courbe de traction est donc directement identifiable. Il ressort de ce travail, dont les résultats sont illustrés par la figure I-12, que les effets de l'hydrogène sont non seulement conditionnés par la pureté du métal mais aussi par la température et la vitesse de déformation. Ainsi, pour du fer de haute pureté, l'introduction d'hydrogène se manifeste par une diminution significative de la contrainte d'écoulement pour des températures supérieures à 190 K. En outre, il apparaît que cet adoucissement est réversible puisque, dès l'arrêt du courant de chargement, la contrainte d'écoulement retrouve son niveau initial. En revanche, en deçà de cette température, ces effets sont inversés, l'hydrogène provoquant un durcissement.

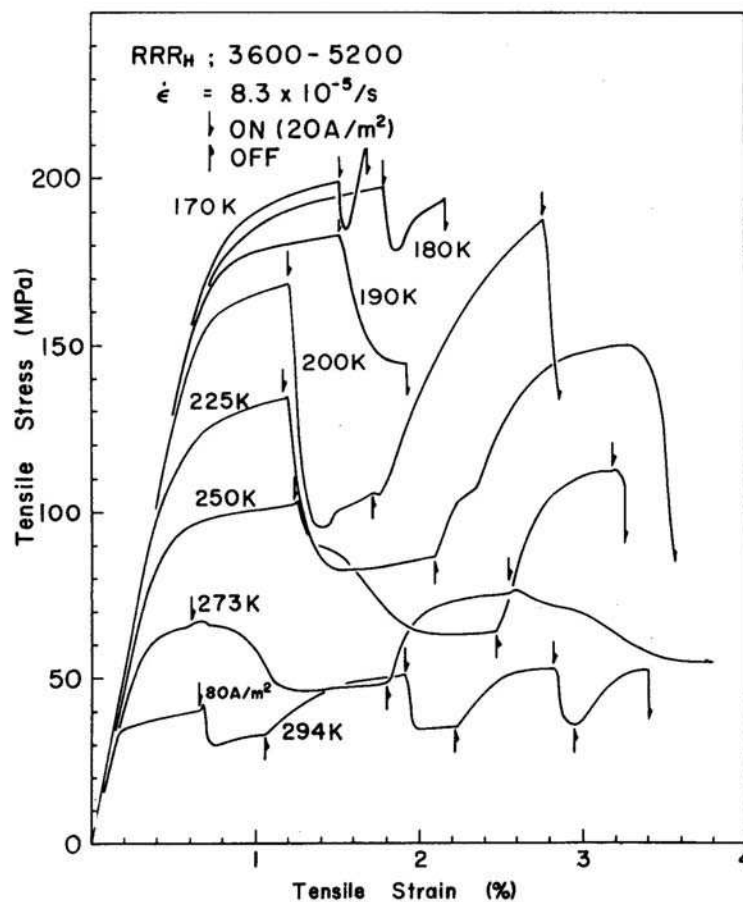


figure I-12. Effet du chargement en hydrogène sur la contrainte d'écoulement du fer ultra pur à différentes températures, d'après Matsui et al. [53], pour une vitesse de déformation de  $8,3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ . L'orientation des flèches indique le déclenchement (pointe de la flèche vers le bas) et l'arrêt (pointe vers le haut) des chargements. On notera que, quantitativement, ces effets sont très importants.

Dans le cas de matériaux de moindre pureté, à basse température ( $T < 190\text{ K}$ ), les impuretés ne semblent avoir aucune incidence sur le comportement induit par l’hydrogène. En revanche, à haute température, l’introduction de l’hydrogène se manifeste par un pic de contrainte suivi d’une diminution progressive de la contrainte d’écoulement et, pour des températures supérieures à  $273\text{ K}$ , ce pic est suivi d’un effet durcissant. A la température ambiante, il apparaît donc que l’hydrogène provoque une diminution de la contrainte d’écoulement dans le cas du fer pur alors que la présence d’impuretés induit un accroissement de la contrainte d’écoulement. Le modèle proposé par Matsui *et al.* repose sur les interactions hydrogène-dislocations vis. A haute température, les auteurs attribuent le mécanisme d’adoucissement induit par l’hydrogène à une modification de la structure de cœur des dislocations vis, favorisant la nucléation de doubles décrochements. Ils estiment que les effets de durcissement sont imputables à l’ancrage des dislocations coin. A faible température, l’hydrogène favorise toujours la formation de décrochements mais l’hydrogène fait obstacle à leur déplacement. L’adoucissement correspond ainsi à une augmentation de la mobilité des dislocations vis alors que le durcissement est attribué à l’ancrage des dislocations coin.

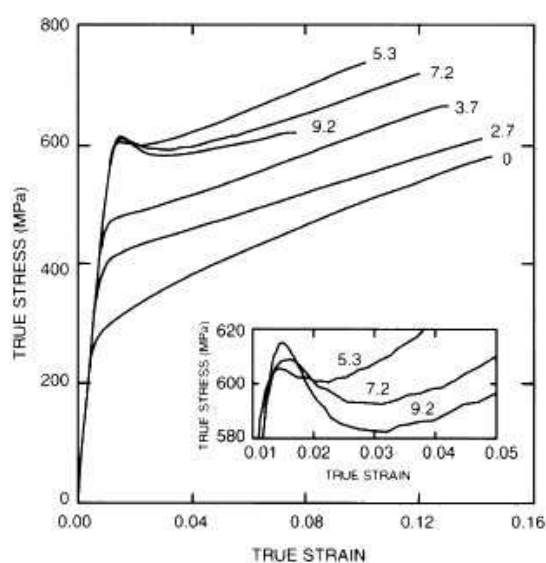
**Dans le fer, les effets de l’hydrogène sur la contrainte d’écoulement sont gouvernés par l’influence de l’hydrogène sur la mobilité des dislocations et dépendent très étroitement des conditions de sollicitation (température et vitesse de déformation) ainsi que de la pureté des matériaux étudiés.**

### I.3.2 Aciers inoxydables austénitiques

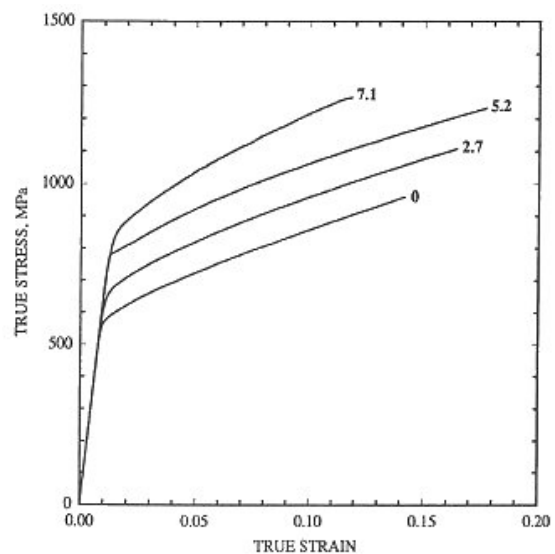
L’effet de l’hydrogène dans les aciers austénitiques est généralement qualifié de « durcissant ». Cependant, l’utilisation de ce terme général ne permet pas de caractériser exactement l’influence de l’hydrogène sur le comportement en traction de ces aciers. Il semble en effet qu’il faille distinguer l’influence de l’hydrogène sur la limite d’élasticité des effets sur le taux d’écrouissage.

L’hydrogène induit une augmentation de la limite d’élasticité dans un grand nombre d’aciers austénitiques, en particulier les aciers de type 21Cr-6Ni-9Mn [56], AISI 310s [57, 58], AISI 304 [58] et AISI 304L [59] et ce, quelle que soit la nature du chargement. Les mesures de dureté Vickers sur un monocristal de 18Cr-14Ni-2Mo pur ou contenant 0,4% massique d’azote et chargés en hydrogène indiquent que l’hydrogène induit un durcissement significatif du matériau [60]. De plus, l’hydrogène augmente significativement la contrainte d’activation du stade I de monocristaux de 18Cr-16Ni-10Mn orientés pour glissement simple [51]. Dans le cas d’essais de traction effectués à la température ambiante sur des aciers de type AISI 310s et AISI 304 hydrogénés par chargement cathodique, il apparaît que la limite d’élasticité croît très fortement avec la teneur en hydrogène. Ainsi, comme en atteste la

figure I-13 a), Alstetter *et al.* [57, 58] ont montré que la limite d'élasticité est plus que doublée à partir d'une concentration en hydrogène de 5% atomique dans du 310s à 295 K. Pour des teneurs en hydrogène supérieures, on observe alors sur les courbes contrainte-déformation un pic de traction. Les tractions effectuées à 77 K (figure I-13 b)) mettent en évidence le fait que la limite d'élasticité croît avec la teneur en hydrogène, mais de manière moins significative qu'à la température ambiante, dans la mesure où cette augmentation « n'est que » de l'ordre de 40% contre plus de 100% à 295 K. En revanche, lors de ces essais réalisés à température cryogénique, aucune discontinuité de la limite d'élasticité n'apparaît pour des concentrations élevées en hydrogène. Pour expliquer la présence de ce crochet de traction, Abraham et Alstetter s'appuient sur le mécanisme d'adoucissement localisé HELP présenté au paragraphe I.1.2.2. Les auteurs estiment qu'en raison de l'écrantage des interactions paires, il est indispensable d'appliquer une contrainte supérieure pour activer le glissement en présence d'hydrogène. Une fois les dislocations libérées de leur atmosphère de Cottrell, le glissement n'est alors plus inhibé par l'hydrogène. La contrainte d'écoulement est alors sensiblement diminuée. A basse température, ils estiment en revanche que l'ancrage des dislocations est tel qu'elles ne peuvent se libérer de leur atmosphère d'hydrogène. Le mécanisme de multiplication opère alors de façon continue ce qui se traduit par l'absence de crochet de traction observée sur la figure I-13 b).



a) T = 298 K



b) T = 77 K

figure I-13. Courbes contrainte-déformation d'un acier austénitique AISI 310s pour différentes teneurs en hydrogène (en % atomique) obtenues par chargement cathodique pour une vitesse de déformation de  $5,5 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  a) à la température ambiante et b) à 77 K. D'après Abraham et Alstetter [57].

Ces essais leur permettent aussi de caractériser l'influence de l'hydrogène sur le taux d'écrouissage en fonction de la température. A l'ambiante, il ressort de ces expériences que plus la teneur en hydrogène croît plus le taux de durcissement aux faibles déformations diminue. De plus, il apparaît que l'hydrogène modifie aussi l'évolution du taux de consolidation. En effet, alors que le taux d'écrouissage du matériau « pur » diminue avec la déformation, ils notent une inversion de ce comportement à partir d'une teneur en hydrogène de 3,7% atomique. En revanche, à 77 K, l'hydrogène augmente le taux d'écrouissage sans pour autant modifier son comportement, le taux de consolidation diminue donc continûment avec la déformation quelle que soit la teneur en hydrogène. Abraham et Alstetter ne proposent qu'une explication partielle à ce phénomène. A température ambiante, ils attribuent cette diminution du taux d'écrouissage à la diminution des interactions entre dislocations assistée par la diffusion de l'hydrogène. Cependant, si cette interprétation permet d'expliquer la « non-diminution » du taux de consolidation aux températures cryogéniques, l'hydrogène ne pouvant diffuser à ces températures, il ne donne aucune explication sur l'augmentation du taux d'écrouissage observée. Birnbaum et Ulmer [61] estiment que l'augmentation de la limite d'élasticité peut être attribuée à la formation d'une phase  $\gamma^*$  riche en hydrogène. Bien qu'Ulmer et Alstetter [13] aient montré que l'hydrogène demeure en solution solide jusqu'à des concentrations de 15% atomique, la formation d'hydrures peut intervenir localement sous l'action d'une contrainte appliquée à des concentrations inférieures. Ainsi, la formation d'hydrures dans la région de cœur des dislocations pourrait ancrer très efficacement les dislocations, provoquant alors un durcissement significatif. Reste que ce mécanisme ne permet pas d'expliquer l'influence de l'hydrogène sur le taux d'écrouissage. Devant l'impossibilité d'expliquer les effets de l'hydrogène sur la limite d'élasticité ainsi que sur le taux d'écrouissage à basse température comme une conséquence directe de l'écrantage des interactions de paires, Abraham et Alstetter suggèrent l'existence d'un mécanisme d'interaction complémentaire. Selon eux, l'hydrogène agit sur les dislocations ayant une mobilité telle qu'aucune atmosphère de Cottrell ne se forme en leur voisinage par un mécanisme de durcissement par solution solide.

Récemment, Yagodzinsky *et al.* [51] ont étudié l'influence de l'hydrogène sur le comportement en traction de monocristaux d'aciers austénitiques 18Cr-16Ni-10Mn orientés pour glissement simple. Ils montrent qu'une teneur en hydrogène de 0,7% atomique induit une augmentation de l'ordre de 66% de la contrainte d'activation du stade I comme en atteste la figure I-14. Au cours du stade de glissement plan, l'observation des bandes de Lüders leur permet de conclure que l'hydrogène favorise la localisation de la déformation comme nous l'avons vu dans le paragraphe I.2.3.2. De plus, l'apparition du stade II est sensiblement retardée dans le cas du matériau hydrogéné, ce qui confirme le fait que l'hydrogène favorise la planéité du glissement. Ils constatent que l'hydrogène diminue le taux d'écrouissage en stade II et attribuent cet effet au mécanisme d'écrantage des interactions de paires.

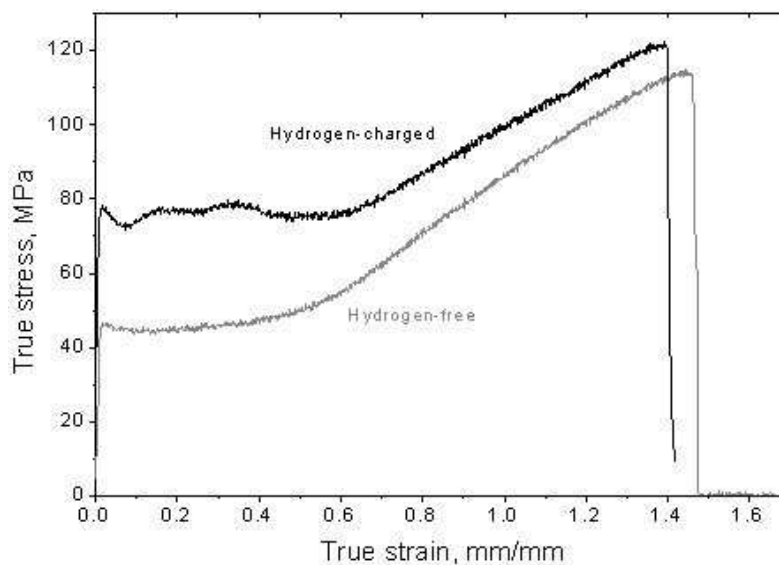


figure I-14. Courbes contrainte-déformation d'un monocristal d'un acier austénitique 18Cr-16Ni-10Mn orienté pour glissement simple « pur » et chargé en hydrogène (0,7% atomique) à la température ambiante pour  $\dot{\epsilon} = 10^{-4} s^{-1}$ . D'après Yagodzinskyy et al. [51].

**L'influence de l'hydrogène sur le comportement en traction des aciers austénitiques se manifeste par une augmentation significative de la limite d'élasticité, ainsi que par une altération significative du taux d'écrouissage.**

### I.3.3 Nickel et alliages à base de nickel

Dans les années 60, Boniszewski et Smith [47] ont les premiers caractérisé l'influence de l'hydrogène sur le comportement du nickel pur à 99%. Les courbes contrainte-déformation à la température ambiante du nickel non chargé et d'échantillons hydrogénés par chargement cathodique sont données figure I-15. Les auteurs estiment que les conditions de chargement employées ne conduisent pas à la formation d'hydrures. Ces courbes mettent en évidence l'influence de l'hydrogène sur la limite d'élasticité et le taux d'écrouissage. Dans les deux cas, l'hydrogène provoque un durcissement qui, par ailleurs, est proportionnel à la teneur en hydrogène. Les auteurs ont aussi effectué un essai de traction interrompu à une contrainte  $\sigma_p$  sur du nickel chargé en hydrogène. Lors de l'interruption, l'éprouvette est dégazée par un séjour de 72 heures à 100°C. Ils constatent alors que la contrainte mesurée à la remise en charge est nettement abaissée par rapport à la valeur  $\sigma_p$ . De plus, il apparaît que le taux de consolidation est lui aussi significativement diminué par ce dégazage. Il ressort donc de l'étude de Boniszewski et Smith qu'à la température ambiante, l'hydrogène a une influence marquée, tant sur la limite d'élasticité que sur le taux d'écrouissage.

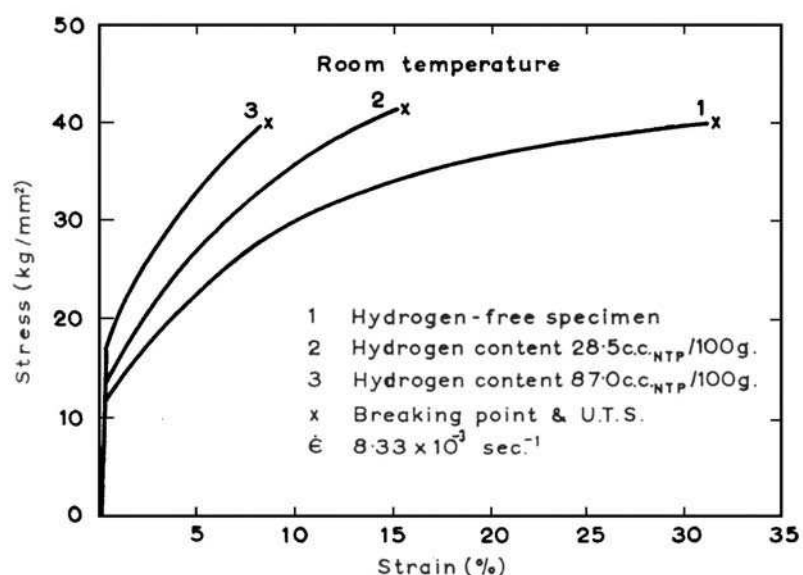


figure I-15. Influence de la teneur en hydrogène sur les courbes contrainte-déformation du nickel « pur » à la température ambiante pour  $\dot{\epsilon} = 8,3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . D'après Boniszewski et Smith [47].

Boniszewski et Smith ont aussi évalué l'influence de la température sur le comportement du nickel hydrogéné en traction. Pour ce faire, ils ont réalisé des essais de traction à une vitesse de déformation donnée à différentes températures, depuis l'ambiante jusqu'à 77 K. Ces essais ont alors permis de caractériser le domaine d'existence des instabilités plastiques de type Portevin-Le Chatelier dont nous avons parlé dans le paragraphe précédent. En deçà du domaine du PLC, à 77 K notamment, ils notent la présence d'un crochet de traction très peu prononcé. En revanche, à cette température, l'hydrogène n'affecte absolument pas le taux d'écrouissage, les courbes sont alors rigoureusement parallèles. Outre ces manifestations des effets de l'hydrogène sur les mécanismes de plasticité du nickel, Boniszewski et Smith analysent aussi l'influence de l'hydrogène sur sa ductilité et constatent que les ruptures induites par l'hydrogène sont de nature intergranulaire. Par la suite, Wilcox et Smith [48] ont confirmé le rôle joué par l'hydrogène, introduit par chargement gazeux, dans l'augmentation du taux d'écrouissage et la diminution de l'allongement à rupture. Nous reviendrons sur le rôle joué par le transport de l'hydrogène par les dislocations dans la diminution de la ductilité de l'alliage binaire à base de nickel contenant 16% massique de chrome, dans le paragraphe II.2.3.2.

Un adoucissement macroscopique peut être mis en évidence sous certaines conditions très spécifiques. L'étude de Kimura et Birnbaum [62] met ainsi en évidence l'influence du chargement cathodique sur la contrainte d'écoulement du nickel. Il apparaît alors qu'en fonction de la densité du courant de charge, ce mode de chargement induit aussi bien un adoucissement qu'un durcissement. Les auteurs ont effectué des chargements cathodiques en



cours d'essais de traction sur des éprouvettes de nickel pur (99,9%) et de très haute pureté (99,999%). Ils observent ainsi un accroissement de la contrainte d'écoulement pour des densités de courant inférieures à 40 A/m<sup>2</sup> et, inversement, un adoucissement pour des intensités supérieures. Il est à noter que l'effet durcissant est réversible, une fois le chargement arrêté le taux de consolidation retrouve un niveau comparable à celui mesuré initialement. En revanche, pour des courants de chargement supérieurs à 40 A/m<sup>2</sup>, l'arrêt du chargement, et donc de l'adoucissement, coïncide avec une augmentation du taux d'écrouissage. Les auteurs attribuent ces effets d'adoucissement à la formation d'hydrures en surface ou à l'introduction de dislocations lors des chargements cathodiques effectués pour des intensités élevées, et non à des effets sur les interactions entre dislocations. Eastman *et al.* [63] ont, pour leur part, analysé les effets conjugués de l'hydrogène et du carbone sur la déformation plastique du nickel. Ils ont principalement étudié ces effets aux très faibles déformations et pour de faibles vitesses de déformation. Au cours d'essais de traction sur des lames minces sous atmosphère contrôlée (He ou H<sub>2</sub>), ils constatent que les effets adoucissants de l'hydrogène ne sont observables que pour de très faibles vitesses de déformation (10<sup>-7</sup> s<sup>-1</sup>) et des teneurs relativement élevées de carbone (1200 ppm atomique). Dans ce cas de figure, il apparaît que l'hydrogène diminue la limite d'élasticité mais en revanche accroît le taux de consolidation. Cet effet adoucissant disparaît avec l'augmentation de la vitesse de déformation. Eastman *et al.* ont aussi réalisé des essais de traction sur des échantillons massiques préchargés en hydrogène. Leurs résultats sont représentés schématiquement par la figure I-16. Il apparaît que l'introduction d'hydrogène dans un matériau préalablement dopé en carbone peut, suivant leurs teneurs relatives, induire une diminution de la contrainte d'écoulement. Cet effet est, selon les auteurs, imputable à la modification des interactions carbone-dislocations. En revanche, Eastman *et al.* ne proposent pas de mécanisme précis pour expliquer la nature des effets de l'hydrogène sur ces interactions.

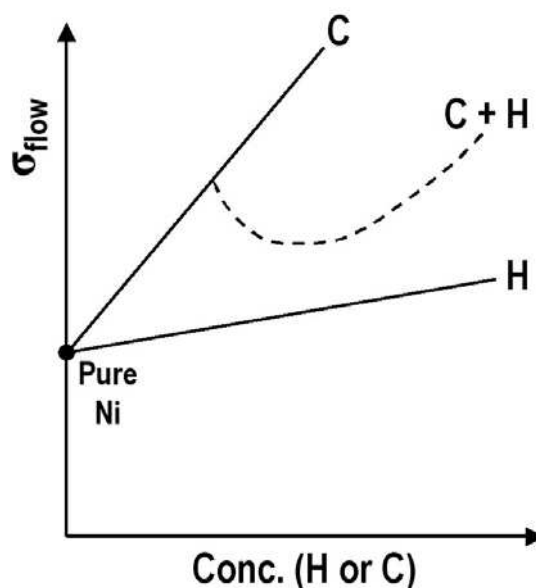


figure I-16. Représentation schématique des effets induits par l'addition de carbone seul (C), d'hydrogène seul (H) ainsi que leurs effets conjugués (C + H) sur la contrainte d'écoulement de nickel « pur ». D'après Eastman et al. [63].

Dans le nickel, il apparaît donc que la contribution de l'hydrogène à la contrainte d'écoulement est de type « durcissant ». Les quelques exemples d'adoucissement présentés précédemment ne correspondent pas à une modification directe des mécanismes de réactions entre dislocations induite par l'hydrogène. Dans un cas, cet adoucissement est gouverné par la formation d'hydrures et, dans le second, cet effet est conditionné par la présence de carbone. Comme la contrainte d'écoulement en traction résulte du franchissement thermiquement activé des obstacles de la forêt par les dislocations mobiles, il apparaît difficile d'observer macroscopiquement la contribution des effets d'écrantage des interactions de paires observables à l'échelle des dislocations. Il semble donc que seule une étude à microstructure de dislocations constante doit permettre l'observation des conséquences de ce mécanisme d'écrantage. Récemment, Magnin *et al.* [64], par des essais de fatigue oligocyclique sur des monocristaux de nickel orientés pour le glissement simple, ont réalisé un tel essai « critique ». La fatigue oligocyclique à amplitude de déformation contrôlée permet en effet de générer une structure de dislocations stationnaire lorsqu'il y a formation de Bandes de Glissement Persistantes (BGP). La courbe représentant l'évolution de la contrainte à saturation en fonction de la déformation plastique imposée présente un plateau dû à la localisation de la déformation dans les BGP. A l'intérieur de ce plateau, seule la fraction volumique de BGP évolue avec l'amplitude de la déformation. La figure I-17 représente l'évolution comparée des courbes d'écrouissage cyclique de nickel pur et de monocristaux hydrogénés par chargement gazeux (1300 ppm atomique). Ils observent une faible diminution, de l'ordre de 10%, de la contrainte à saturation dans le domaine du plateau ainsi qu'une augmentation significative de

la déformation plastique à laquelle débute le plateau. Les auteurs attribuent ce retard à la formation des BGP à une diminution marquée de la probabilité de glissement dévié. De plus, l'adoucissement cyclique observé est comparable à celui mesuré par chargement cathodique en cours de cyclage par Renaudot [65]. Nous reviendrons en détail sur l'analyse de cet essai dans l'ultime chapitre de ce mémoire dans la mesure où ces résultats, au regard de ceux de Boniszewski et Smith illustrent parfaitement le caractère indirect des interactions hydrogène-dislocations sur la contrainte d'écoulement.

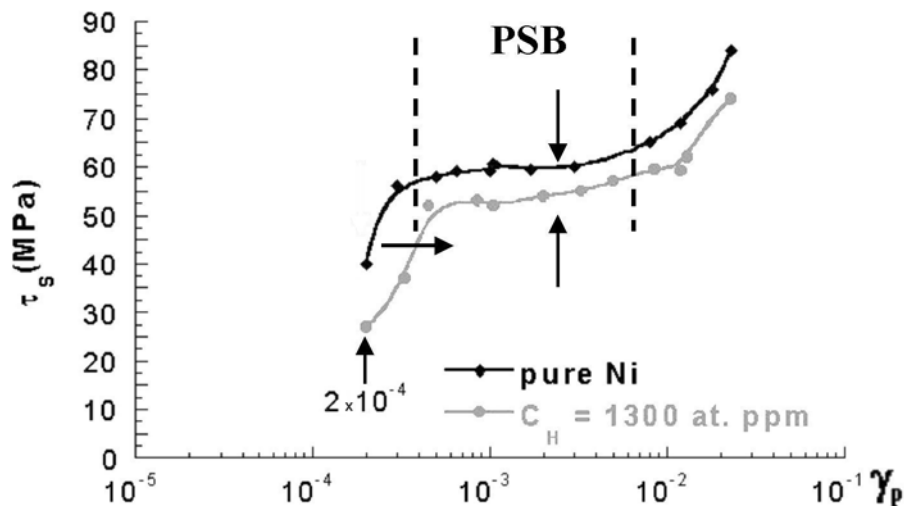


figure I-17. Courbes d'écrouissage cyclique en trois stades de monocristaux orientés pour glissement simple de nickel « pur » et de nickel hydrogéné par chargement gazeux (1300 ppm atomique). D'après Magnin et al. [64].

**A la température ambiante, l'hydrogène provoque une augmentation significative, tant de la limite d'élasticité que de la contrainte d'écoulement. A microstructure constante, l'hydrogène induit une diminution de la contrainte cyclique à saturation lors d'essais de fatigue oligocyclique.**

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons rappelé le rôle joué par l'hydrogène dans les processus d'endommagement de type CSC et FAH. Nous nous sommes en particulier attachés à décrire les modèles HELP et CEPD qui font appel au mécanisme d'écrantage des interactions de paires induit par l'hydrogène. Compte tenu de l'importance accordée par les modèles précités aux interactions hydrogène-dislocations, nous avons analysés les manifestations de ces interactions, tant à l'échelle microscopique, que macroscopiquement. En outre, il apparaît que le piégeage de l'hydrogène sur les dislocations revêt une importance particulière dans la mesure où ces dernières constituent des pièges mobiles qui facilitent le transport de

l’hydrogène. A ce mécanisme d’ancrage et de transport vient s’ajouter une modification du comportement des dislocations en présence d’hydrogène. En effet, un grand nombre d’observations expérimentales mettent en évidence le fait que l’hydrogène en solution modifie les interactions de paires entre dislocations en favorisant notamment la formation d’empilements denses. En outre, certaines de ces observations à l’échelle microscopique trouvent une illustration directe à l’échelle macroscopique. Ainsi, l’augmentation de la distance de dissociation des partielles permet d’expliquer le fait que l’hydrogène accroisse la planéité et favorise la localisation du glissement. Ces observations apparaissent ainsi accréder le mécanisme d’écrantage des interactions de paires assisté par l’hydrogène, pierre angulaire des modèles HELP et CEPM. Cependant, au vu des effets de l’hydrogène sur les courbes contrainte-déformation d’un grand nombre de matériaux, il semble impossible d’évaluer directement la contribution de ce mécanisme local sur la contrainte d’écoulement. En effet, la plupart des essais de traction effectués sur des matériaux hydrogénés conduisent non pas à une diminution du taux d’écrouissage mais au contraire à un effet de type « durcissant ». Il apparaît ainsi que l’hydrogène induit une augmentation de la limite d’élasticité, l’accroissement le plus significatif étant observable dans le cas des aciers austénitiques. En ce qui concerne les effets de l’hydrogène sur la contrainte d’écoulement, il semble difficile d’extraire de ces résultats une tendance générale dans la mesure où, pour le nickel, l’hydrogène accroît significativement le taux d’écrouissage, alors que ces effets sont plus contrastés dans le cas du fer ou des aciers austénitiques. Ainsi, il apparaît que l’hydrogène en solution, en modifiant les interactions de paires, agit sur plusieurs mécanismes de réactions entre dislocations et, incidemment, sur l’évolution des densités de dislocations mobiles et de la forêt. Ainsi, l’hydrogène affecte la contrainte d’écoulement de manière indirecte, et probablement à travers une multiplicité de mécanismes élémentaires.

Nous allons commencer par étudier la plus directe, à savoir l’épinglage et le traînage des atmosphères d’hydrogène. Pour ce faire, nous nous sommes appuyés sur des essais de vieillissement statique afin de mesurer la force d’épinglage à saturation en fonction de la teneur en hydrogène. Cette analyse fait l’objet du chapitre II et porte plus précisément sur l’étude des mécanismes de vieillissement du nickel et d’un alliage binaire nickel contenant 16% massique de chrome.

## **Bibliographie - I**

- [1] C. D. Beachem, "A new model for hydrogen-assisted cracking (hydrogen embrittlement)", *Metallurgical Transactions* (1972), 3, p. 437-451.
- [2] H. K. Birnbaum et P. Sofronis, "Hydrogen-enhanced localised plasticity-a mechanism for hydrogen-related fracture", *Materials Science and Engineering* (1994), A176, p. 191-202.
- [3] T. Magnin, A. Chambreuil et B. Bayle, "The corrosion-enhanced plasticity model for stress corrosion cracking in ductile fcc alloys", *Acta Materialia* (1996), 44, p. 1457-1470.
- [4] I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "An HVEM study of hydrogen effects on the deformation and fracture of nickel", *Acta Metallurgica* (1986), 34, p. 353-366.
- [5] P. Rozenak, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "HVEM studies of the effects of hydrogen on the deformation and fracture of AISI type 316 austenitic stainless steel", *Acta Metallurgica et Materialia* (1990), 38, p. 2031-2040.
- [6] E. I. Meletis, K. Lian et W. Huang, "Vacancy-dislocation interactions and transgranular stress corrosion cracking", dans *Corrosion-Deformation interactions*, Fontainebleau, France (1992), édité par T. Magnin, Les éditions de Physique, p. 69-81.
- [7] D. Tanguy, B. Bayle, R. Dif et T. Magnin, "Hydrogen effects during IGSCC of pure Al-5Mg alloy in NaCl media", *Corrosion Science* (2002), 44, p. 1163-1175.
- [8] D. Tanguy et T. Magnin, "Atomic scale simulation of intergranular segregation of hydrogen in Al-Mg: implications for H-induced damage", *Philosophical Magazine A* (2003), in press.
- [9] S. A. Danilkin, H. Fuess, H. Wipf, A. Ivanov, V. G. Gavriljuk, D. Delafosse et T. Magnin, "Hydrogen vibrations in austenitic fcc Fe-Cr-Mn-Ni steels", *Europhysics Letters* (2003), 63, p. 69-75.
- [10] J. Chêne et A. M. Brass, "Interactions hydrogène-métal en relation avec le processus de corrosion sous contrainte", dans *Corrosion sous contrainte - Phénoménologie et mécanismes* (1990), édité par D. Desjardins et R. Oltra, Les éditions de Physique, p. 159-210.
- [11] A. M. Brass et J. Chêne, "Rôle des interfaces et des dislocations sur la diffusion et le piégeage de l'hydrogène dans les matériaux métalliques", dans *41e colloque de Métallurgie de l'INSTN, Saclay* (1998), Les éditions de Physique, *Journal de Physique IV*, Pr4, p. 165-172.
- [12] B. Baranowski, S. Majchrzak et T. B. Flanagan, "The volume increase of fcc metals and alloys due to interstitial hydrogen over a wide range of hydrogen contents", *Journal of Physics F : Metal Physics* (1971), 1, p. 258-261.
- [13] D. G. Ulmer et C. J. Altstetter, "Phase relations in the hydrogen-austenite system", *Acta Metallurgica et Materialia* (1993), 41, p. 2235-2241.

- [14] L. Quiao, M. Chu et X. Mao, "The role of hydrogen in Stress-Corrosion Cracking of austenitic stainless steel in hot MgCl<sub>2</sub> solution", *Metallurgical and Materials transactions A* (1996), 26A, p. 1777-1784.
- [15] P. Combrade, dans *Corrosion localisée*, édité par F. Dabosi, G. Béranger et B. Baroux Les éditions de Physique, Les Ulis, France (1994), p. 241-283.
- [16] F. Foct, O. De Bouvier et T. Magnin, "Stress corrosion cracking mechanisms of alloy 600 polycrystals and single crystals in primary water - Influence of hydrogen", *Metallurgical and Materials transactions A* (2000), 31A, p. 2025-2036.
- [17] D. Le Friant, "Fissuration assistée par l'hydrogène et corrosion sous contrainte des aciers de pipelines", Thèse ENS des Mines de St Etienne (2000).
- [18] A. Chambreuil-Paret, J. P. Chateau et T. Magnin, "Influence of the slip conditions on the stress corrosion cracking microprocesses in fcc materials", *Scripta Materialia* (1997), 37, p. 1337-1343.
- [19] L. Fournier, D. Delafosse et T. Magnin, "Cathodic hydrogen embrittlement in alloy 718", *Materials Science and Engineering* (1999), A269, p. 111-119.
- [20] X. Wu et J. I. Dickson, "A fractographic study of hydrogen effects during SCC of 316L and 310 stainless steels", dans *EDEM*, Bordeaux, France (2003), édité par J. M. Olive et A. Zielinski, European Federation of Corrosion.
- [21] D. G. Westlake, "A generalized model for hydrogen embrittlement", *Transactions of the ASM* (1969), 62, p. 1000.
- [22] D. Shih, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "Hydrogen embrittlement of titanium: In-situ tem studies", *Acta Metallurgica* (1988), 36, p. 111-124.
- [23] W. F. Flanagan, P. Bastias et B. D. Lichter, "A theory of transgranular stress corrosion cracking", *Acta Metallurgica et Materialia* (1991), 39, p. 695-705.
- [24] J. Lufrano, P. Sofronis et H. K. Birnbaum, "Modelling of hydrogen transport and elastically accommodated hydride formation near a crack tip", *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* (1996), 44, p. 179-205.
- [25] N. J. Petch, "The lowering of fracture-stress due to surface adsorption", *Philosophical Magazine A* (1956), 1, p. 331-337.
- [26] A. R. Troiano, "The role of hydrogen and other interstitials in the mechanical behaviour of metals", *Transactions of the ASM* (1960), 52, p. 54-80.
- [27] R. A. Oriani et P. H. Josephic, "Equilibrium aspects of hydrogen-induced cracking of steels", *Acta Metallurgica* (1974), 22, p. 1065-1074.
- [28] S. P. Lynch, "Environmentally assisted cracking: Overview of evidence for an adsorption-induced localised-slip process", *Acta Metallurgica* (1988), 36, p. 2639-2661.
- [29] E. Sirois et H. K. Birnbaum, "Effects of hydrogen and carbon on thermally activated deformation in nickel", *Acta Metallurgica et Materialia* (1992), 40, p. 1377-1385.
- [30] P. Sofronis, "The influence of mobility of dissolved hydrogen on the elastic response of a metal", *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* (1995), 43, p. 1385-1407.
- [31] J. P. Chateau, D. Delafosse et T. Magnin, "Numerical simulations of hydrogen-dislocation interactions in FCC stainless steels. Part II: hydrogen effects on crack tip plasticity at a stress corrosion crack", *Acta Materialia* (2002), 50, p. 1523-1538.

- [32] J. Chêne, J. Ovejero Garcia, C. Paes de Oliveira, M. Aucouturier et P. Lacombe, "Localisation microstructurale de l'hydrogène cathodique dans les alliages Fe-Ni-C, Fe-Ni et Fe-Cr-Ni martensitiques ou austénitiques, étudiée par autoradiographie à haute résolution", *Journal de Microscopie et de Spectroscopie Electroniques* (1979), 4, p. 37-50.
- [33] A. M. Brass et J. Chêne, "Hydrogen-deformation interactions in iron and nickel base alloys", dans *Second International Conference on Corrosion - Deformation Interactions*, Nice, France (1996), édité par T. Magnin, The Institute of Materials for the European Federation of Corrosion, 21, p. 196-205.
- [34] P. Bastien et P. Azou, "Influence de l'écrouissage sur le frottement intérieur du fer et de l'acier, chargés ou non en hydrogène", *Comptes Rendus des Séances de l'Académie des Sciences* (1951), 232, p. 1845-1848.
- [35] J. A. Donovan, "Accelerated evolution of hydrogen from metals during plastic deformation", *Metallurgical Transactions A* (1976), 7A, p. 1677-1683.
- [36] A. M. Brass et J. Chêne, "Influence of deformation on the hydrogen behavior in iron and nickel base alloys: a review of experimental data", *Materials Science and Engineering* (1998), A242, p. 210-221.
- [37] J. Chêne et A. M. Brass, "Hydrogen transport by mobile dislocations in nickel base superalloy single crystals", *Scripta Materialia* (1999), 40, p. 537-542.
- [38] F. Lecoester, J. Chêne et D. Noel, "Hydrogen embrittlement of the Ni-base alloy 600 correlated with hydrogen transport by dislocations", *Materials Science and Engineering* (1999), 262, p. 173-183.
- [39] P. J. Ferreira, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "Influence of hydrogen on the stacking-fault energy of an austenitic stainless steel", *Materials Science Forum* (1996), 207-209, p. 93-96.
- [40] P. J. Ferreira, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "Hydrogen effects on the interaction between dislocations", *Acta Materialia* (1998), 46, p. 1749-1757.
- [41] P. J. Ferreira, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "Hydrogen effects on the character of dislocations in high-purity aluminium", *Acta Materialia* (1999), 47, p. 2991-2998.
- [42] D. P. Abraham et C. J. Altstetter, "Hydrogen-enhanced localization of plasticity in an austenitic stainless steel", *Metallurgical and Materials transactions A* (1995), 26A, p. 2859-2871.
- [43] W. A. McInter, A. W. Thompson et I. M. Bernstein, "The effect of hydrogen on the slip character of nickel", *Acta Metallurgica* (1980), 28, p. 887-894.
- [44] W. S. Walston, I. M. Bernstein et A. W. Thompson, "The effect of internal hydrogen on a single-crystal nickel-base superalloy", *Metallurgical Transactions A* (1992), 23A, p. 1313-1322.
- [45] H. J. Engelmann, S. Schwarz, M. Uhlemann et K. Mummert, "Austenitic stainless steels and nickel base alloys - Evaluation of their susceptibility to Hydrogen Induced Cracking", dans *Second International Conference on Corrosion - Deformation Interactions*, Nice (1996), édité par T. Magnin, The Institute of Materials for the European Federation of Corrosion, 21, p. 238-247.
- [46] A. H. Cottrell et B. A. Bilby, "Dislocation theory of yielding and strain ageing of Iron", *Proceedings of the Royal Society A* (1949), 62, p. 49-62.

- [47] T. Boniszewski et G. C. Smith, "The influence of hydrogen on the plastic deformation ductility and fracture of nickel in tension", *Acta Metallurgica* (1963), 11, p. 165-178.
- [48] B. A. Wilcox et G. C. Smith, "The Portevin-Le Chatelier effect in hydrogen charged nickel", *Acta Metallurgica* (1964), 12, p. 371-376.
- [49] A. H. Windle et G. C. Smith, "The effect of hydrogen on the plastic deformation of nickel single cristal", *Metal Science Journal* (1968), 2, p. 187-191.
- [50] P. Combette et J. Grilhé, "Effet Portevin Le Chatelier et discontinuité à la limite élastique dans le nickel hydrogéné", *Mémoires Scientifiques de la Revue de Métallurgie* (1970), LXVII, p. 491-505.
- [51] Y. Yagodzinskyy, O. Tarasenko et H. Hänninen, "Effect of hydrogen on plastic deformation of stable 18Cr-16Ni-10Mn austenitic stainless steel single crystals", dans *International Conference on Hydrogen Effects on Material Behavior and Corrosion Deformation Interactions H-CDI*, Jackson Lake Lodge, Morgan, Wy, USA (2002).
- [52] H. Kimura, H. Matsui et S. Moriya, "Comment on the paper, "The lattice hardening due to dissolved hydrogen in iron and steel" by Asano and Otsuka", *Scripta Metallurgica* (1977), 11, p. 473-474.
- [53] H. Matsui, H. Kimura et S. Moriya, "The effect of hydrogen on the mechanical properties of high purity iron. I. Softening and hardening of high purity iron by hydrogen charging during tensile deformation", *Materials Science and Engineering* (1979), 40, p. 207-216.
- [54] S. Moriya, H. Matsui et H. Kimura, "The effect of hydrogen on the mechanical properties of high purity iron. II. Effect of quenched-in hydrogen below room temperature", *Materials Science and Engineering* (1979), 40, p. 217-225.
- [55] H. Matsui, H. Kimura et A. Kimura, "The effect of hydrogen on the mechanical properties of high purity iron. III. The dependence of softening on specimen size and charging current density", *Materials Science and Engineering* (1979), 40, p. 227-234.
- [56] A. J. West Jr et M. R. Louthan Jr, "Hydrogen effects on the tensile properties of 21-6-9 stainless steel", *Metallurgical Transactions A* (1982), 13A, p. 2049-2058.
- [57] D. P. Abraham et C. J. Altstetter, "The effect of hydrogen on the yield and flow stress of an austenitic stainless steel", *Metallurgical and Materials transactions A* (1995), 26A, p. 2849-2858.
- [58] D. G. Ulmer et C. J. Altstetter, "Hydrogen-induced strain localization and failure of austenitic stainless steels at high hydrogen concentrations", *Acta Metallurgica et Materialia* (1991), 39, p. 1237-1248.
- [59] G. R. Caskey, "Effect of hydrogen on work hardening of type 304L austenitic stainless steel", *Scripta Metallurgica* (1981), 15, p. 1183-1186.
- [60] Y. Rigual Sucre, A. Iost, J. B. Vogt et Y. I. Chumlyakov, "Mechanical properties of austenitic stainless steel single crystals: Influence of nitrogen and hydrogen content", *Metallurgical and Materials transactions A* (2000), 31A, p. 153-161.
- [61] H. K. Birnbaum et D. G. Ulmer, "Discussion on " Mechanism for hydrogen embrittlement of austenitic stainless steel"", dans *Hydrogen effects on material behavior*, Jackson Lake Lodge, Morgan, Wy, USA (1989), édité par N. R. Moody et A. W. Thompson, TMS, p. 431.



- [62] A. Kimura et H. K. Birnbaum, "The effects of cathodically charged hydrogen on the flow stress of nickel and nickel-carbon alloys", *Acta Metallurgica* (1987), 35, p. 1077-1088.
- [63] J. Eastman, F. Heubaum, T. Matsumoto et H. K. Birnbaum, "The effect of hydrogen on the solid solution strengthening and softening of nickel", *Acta Metallurgica* (1982), 30, p. 1579-1586.
- [64] T. Magnin, C. Bosch, K. Wolski et D. Delafosse, "Cyclic plastic deformation behaviour of Ni single crystals oriented for slip as a function of hydrogen content", *Materials Science and Engineering* (2001), A314, p. 7-11.
- [65] N. Renaudot, "Apport de la fatigue oligocyclique sur alliages Ni-Cr-Fe d'ultra haute pureté et sur monocristaux de Ni à la compréhension du rôle de l'hydrogène en corrosion sous contrainte des alliages 600 et 690", Thèse ENS des Mines de St Etienne (1999).

**Chapitre II. :**  
**EFFETS DE VIEILLISSEMENT**



## **Introduction**

Dans le chapitre précédent, nous avons rappelé que l'un des mécanismes clefs de certains modèles de Corrosion Sous Contrainte (CSC) et de Fragilisation Assistée par l'Hydrogène (FAH), de type CEPMP et HELP, est la localisation de la déformation assistée par l'hydrogène. Ces modèles sont étayés par des observations, à l'échelle des dislocations, qui confirment le fait que l'hydrogène écrante les interactions entre dislocations. Cependant, la principale difficulté que rencontre cette approche est que ces mécanismes locaux ne se manifestent généralement pas à l'échelle macroscopique. Les essais de traction sur des matériaux hydrogénés donnent des résultats contrastés, qui mettent généralement en évidence un effet « durcissant » de l'hydrogène.

Nous étudions l'effet de l'hydrogène sur le comportement collectif des dislocations en termes de traînage des atmosphères de soluté. A cet effet, nous avons utilisé les essais de vieillissement dynamique et statique comme « marqueurs macroscopiques » des interactions hydrogène-dislocations. Nous nous sommes en particulier appuyés sur des essais de vieillissement statique sur du nickel pur et un alliage binaire à base de nickel contenant 16% massique de chrome pour mesurer la force maximale d'épinglage en fonction de la teneur en hydrogène.

Dans ce chapitre, nous présentons tout d'abord les mécanismes régissant les phénomènes de vieillissement. Pour commencer, nous exposons les mécanismes de vieillissement dynamique puis, dans un deuxième temps, nous analysons le phénomène de vieillissement statique à la lumière du « dislocation model » développé par Kubin et Estrin. Dans cette partie, nous cherchons à identifier l'influence des différents paramètres expérimentaux sur l'évolution du pic de vieillissement afin d'orienter notre étude expérimentale. Nous gardons à l'esprit que ces deux modes de vieillissement, statique et dynamique, sont gouvernés par le même mécanisme et que, fondamentalement, seule la nature des essais mécaniques effectués les distingue. La deuxième partie de ce chapitre est consacrée à la présentation des résultats des essais de vieillissement dynamique et statique réalisés sur du nickel chargé en hydrogène et l'alliage Ni-16Cr hydrogéné. Ces essais nous permettent d'évaluer la contrainte maximale d'épinglage des dislocations par leur atmosphère de soluté. Par ailleurs, nous présentons des résultats qui illustrent le rôle du transport de l'hydrogène par les dislocations dans la diminution de la ductilité de l'alliage Ni-16Cr.

## II.1 Mécanismes de Vieillissement

La déformation plastique, bien qu'hétérogène à l'échelle microscopique, est généralement considérée comme homogène à l'échelle macroscopique. Cependant, il existe des matériaux pour lesquels la déformation macroscopique présente des instabilités associées à un régime de déformation localisée. Une des manifestations de ces instabilités est la présence d'un crochet de traction suivi d'un palier durant lequel le corps de l'éprouvette est parcouru par des bandes de Lüders. Au début du XX<sup>ème</sup> siècle, Portevin et Le Chatelier [1] ont mis en évidence un autre type de déformation macroscopiquement hétérogène. Le phénomène Portevin-Le Chatelier (PLC), illustré figure II-1, se manifeste sur les courbes de traction par des décrochements répétés ou des paliers successifs, selon que les essais sont effectués à vitesse imposée de déformation ou de contrainte. L'écoulement plastique qui en résulte est hétérogène et consiste en l'initiation et la propagation de bandes de déformation le long de l'éprouvette. En outre, l'apparition de ces instabilités nécessite d'atteindre une certaine déformation plastique critique,  $\epsilon_c$ .

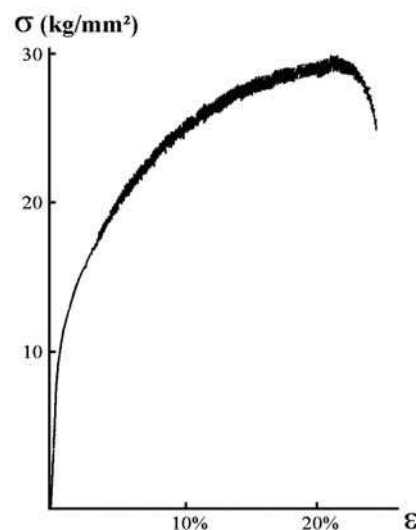


figure II-1. Illustration de l'apparition d'instabilités sur une courbe de traction d'un alliage Al-Cu-Mn à l'ambiante. D'après Portevin et Le Chatelier [1].

Ce paragraphe comporte deux parties. Tout d'abord, nous rappelons les mécanismes à l'origine du vieillissement dynamique depuis l'approche de Cottrell et Bilby [2] jusqu'aux modèles récents. Dans une seconde partie, nous nous focalisons tout particulièrement sur le vieillissement statique et en particulier sur la modélisation de l'évolution du pic de vieillissement statique.

### II.1.1 Effet Portevin-Le Chatelier et vieillissement dynamique

Dans cette partie, nous revenons tout d'abord sur les modèles qui ont permis de poser les jalons de la compréhension du mécanisme de vieillissement dynamique, à commencer par l'effet Portevin-Le Chatelier. Dans un second temps, nous nous attachons à présenter le « dislocation model » proposé par Kubin et Estrin [3, 4]. Le principal intérêt de ce modèle est de donner une description générale des mécanismes de vieillissement en s'appuyant sur l'évolution couplée des densités de dislocations mobiles et de la forêt.

#### II.1.1.1 Description des mécanismes élémentaires

Cottrell et Bilby [2] furent les premiers à proposer une interprétation microscopique de l'effet Portevin-Le Chatelier. Ils attribuent l'origine de ces instabilités aux interactions dynamiques entre dislocations et nuages d'impuretés. La condition d'existence de ces instabilités repose alors sur un équilibre cinétique entre les mobilités respectives des atomes de soluté et des dislocations. Les nuages ne doivent pas diffuser trop rapidement afin que les dislocations puissent s'en échapper provisoirement. Il faut cependant que les atomes de soluté aient le temps de ségréger sur les dislocations pendant une onde de déformation. Dans cette interprétation « classique » de l'effet Portevin-Le Chatelier, les dislocations se déplacent de manière quasi-visqueuse. La présence de discontinuités sur les courbes de traction à vitesse de déformation imposée est basée sur un processus en trois étapes :

- décrochage des dislocations de leur atmosphère de Cottrell,
- chute de la contrainte d'écoulement due à la brusque augmentation de la densité de dislocations mobiles,
- ségrégation des impuretés sur les dislocations pendant une onde de déformation jusqu'à ce que la contrainte soit suffisante pour provoquer un nouveau désancrage.

En revanche, se pose la question des conditions d'apparition des instabilités dans le cas des alliages substitutionnels, compte tenu de leur faible coefficient de diffusion. Cottrell [5] a alors émis l'hypothèse d'une diffusion assistée par la production de lacunes dont la concentration croît avec la déformation suivant une loi de type  $c_{lacunes} \approx 10^{-4} \varepsilon$  [6]. La principale objection faite à ce modèle réside dans le niveau de sursaturation de lacunes d'écrouissage requis pour rendre compte de la déformation critique d'apparition des instabilités.

Sleeswyk [7] a, le premier, introduit la notion de mouvement discontinu, saccadé, des dislocations, remettant ainsi en cause l'idée de déplacement quasi-visqueux des dislocations. Le mouvement des dislocations procède par sauts instantanés thermiquement activés entre obstacles de la forêt. En considérant le temps de vol entre obstacles comme négligeable

devant le temps d'attente,  $t_a$ , requis pour le franchissement d'un obstacle, la vitesse des dislocations est alors définie par l'expression suivante :

$$v = \frac{L}{t_a} \quad (\text{II.1})$$

où  $L$  est la distance moyenne entre obstacles. Compte tenu de cette expression, la loi d'Orowan peut alors s'écrire comme suit :

$$\dot{\epsilon} = b \rho_m v = b \rho_m \frac{L}{t_a} \quad (\text{II.2})$$

où  $\rho_m$  est la densité de dislocation mobile et  $b$  la norme du vecteur de Burgers.

De plus, Sleeswyk estime que la présence d'instabilités est la conséquence d'une sensibilité négative de la contrainte d'écoulement à la vitesse de déformation. Pour sa part, Penning [8] a été le premier à chercher à construire un modèle mathématique descriptif de l'effet PLC prenant en considération la présence de bandes de déformation. L'originalité de ce travail est d'expliquer ce mécanisme à partir de relations liant contrainte, déformation et vitesse de déformation tout en mettant de côté les mécanismes d'interactions intervenant à l'échelle des dislocations. Ce qui ressort de ce modèle est le rôle crucial joué par la sensibilité de la contrainte d'écoulement à la vitesse de déformation  $S(\epsilon) = \left. \frac{\partial \sigma}{\partial \ln \dot{\epsilon}} \right|_{\epsilon}$  dans les conditions

d'apparition des instabilités. L'étude détaillée de cette grandeur a permis à Mulford et Kocks [9] de proposer une nouvelle approche dans la compréhension des mécanismes gouvernant le vieillissement dynamique. Leur interprétation des effets de vieillissement est illustrée schématiquement par la figure II-2. Cette courbe illustre l'évolution de la résistance au glissement en fonction du temps d'attente  $t_a$  qui, compte tenu de la loi d'Orowan (II.2), est inversement proportionnel à la vitesse de déformation appliquée. La contrainte de franchissement des obstacles, représentée sur la figure II-2, peut alors être décomposée en deux contributions :

- l'une décrivant l'activation classique du franchissement des obstacles, qui croît avec la vitesse de déformation,
- l'autre qui correspond à l'ancrage par vieillissement dynamique, c'est à dire à la diffusion des atomes de solutés sur les dislocations mobiles bloquées sur les obstacles. Pour cette dernière, plus le temps de vieillissement augmente, plus le franchissement nécessite une contrainte élevée. Ce terme de vieillissement dépend donc de la concentration en atomes de soluté ainsi que du coefficient de diffusion de l'espèce considérée.

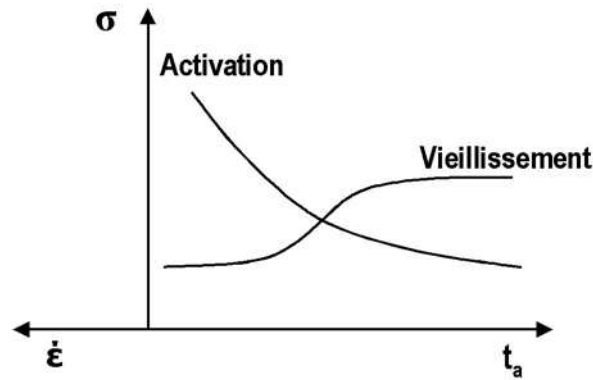


figure II-2. Evolution des deux composantes (activation et vieillissement) de la contrainte de franchissement en fonction du temps de vieillissement  $t_a$  (inversement proportionnel à la vitesse de déformation).

Dans l'hypothèse où ces deux contributions s'additionnent, la figure II-2 met en évidence l'existence d'un domaine au sein duquel la contrainte d'écoulement ne diminue plus continûment avec le temps d'attente. Or,  $S(\varepsilon)$  est précisément la grandeur représentative de l'évolution de la contrainte d'écoulement en fonction de la vitesse de déformation. La sensibilité se décompose ainsi en deux termes :

$$S(\varepsilon) = S_0 + S_v(\varepsilon) \quad (\text{II.3})$$

$S_0$  désigne la composante normale, positive, de la sensibilité à la vitesse de déformation alors que le terme de vieillissement  $S_v(\varepsilon)$  est négatif. Le vieillissement dynamique est alors effectif dans un domaine de vitesse de déformation et de température au sein duquel la sensibilité  $S(\varepsilon)$  est diminuée. Cependant, tant que la sensibilité  $S(\varepsilon)$  demeure positive, la déformation macroscopique est uniforme. L'apparition des instabilités est effective dès que la composante de vieillissement l'emporte sur la composante normale, c'est à dire quand la sensibilité totale est négative. La frontière théorique entre le domaine du vieillissement dynamique et le sous-domaine correspondant à l'effet PLC est alors donnée par la condition  $S(\varepsilon) = 0$ . Le mécanisme de vieillissement dynamique, comme en témoigne la figure II-3, opère donc dans une gamme de température et de vitesse de déformation plus large que celle dans laquelle on observe les instabilités de type PLC.



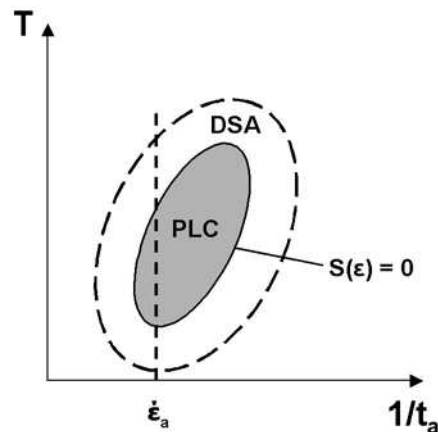


figure II-3. Représentation schématisée du domaine d'existence de l'effet Portevin-Le Chatelier (PLC) par rapport au vieillissement dynamique (DSA pour Dynamic Strain Ageing) en fonction du temps d'attente  $t_a$ . La condition  $S(\epsilon) = 0$  représente la frontière théorique entre ces deux domaines. En pratique, il faut une sensibilité légèrement négative pour observer des instabilités de type PLC.

Lors d'un essai à vitesse de déformation imposée, la figure II-3 illustre le fait que le domaine d'existence du vieillissement dynamique est encadré par deux températures limites, une supérieure  $T_s$  et une inférieure  $T_i$  comme l'avaient remarqué Cottrell et Bilby dans le cas particulier de l'effet Portevin-Le Chatelier. La condition d'existence de ces instabilités repose sur un équilibre cinétique entre les mobilités respectives des atomes de soluté et des dislocations. En effet, pour les températures inférieures à  $T_i$ , la diffusion des atomes de soluté est insuffisante pour que ceux-ci puissent épingler les dislocations. En revanche, pour les températures supérieures à  $T_s$ , les dislocations sont en permanence saturées par leur atmosphère de Cottrell. Au sein de ce domaine de température, on rencontre un second intervalle caractérisant le domaine d'existence des instabilités PLC. Dans ce sous-intervalle de température, McCormick [10] a le premier estimé que les instabilités se produisent lorsque le temps moyen d'arrêt des dislocations,  $t_a$ , est égal au temps nécessaire au blocage des dislocations arrêtées, ou temps de vieillissement,  $t_v$ .

#### II.1.1.2 Le « dislocation model »

Il est maintenant admis que les effets de vieillissement dynamique se manifestent par une contribution négative à la sensibilité  $S(\epsilon)$ . En revanche, le mécanisme à l'origine de la dépendance de  $S(\epsilon)$  a longtemps été sujet à polémique. Dans la lignée de Cottrell, un certain nombre d'auteurs attribuaient cette dépendance à une sursaturation de lacunes venant assister la diffusion des atomes de soluté. En revanche, une autre école n'accorde aucun rôle aux lacunes et analyse les effets de vieillissement en termes d'épinglage des dislocations mobiles

par diffusion de cœur le long des dislocations de la forêt. Les arguments des deux camps ont fait l'objet d'un article signé par les tenants des deux hypothèses, à savoir Van Den Beukel et Kocks [11]. Cependant ces deux approches ont en commun de s'appuyer sur une description très simple de l'évolution des densités de dislocations; à la différence du « dislocation model » proposé par Kubin et Estrin [3, 4] qui repose sur l'évolution couplée des densités mobiles et de la forêt. Le paramètre clef de ce modèle  $\Omega(\varepsilon)$  permet de relier ces deux densités et s'écrit :

$$\Omega(\varepsilon) = b\rho_m\rho_f^{-1/2} \quad (\text{II.4})$$

où  $\rho_m$  et  $\rho_f$  sont respectivement les densités de dislocations mobiles et de la forêt et  $b$  la norme du vecteur de Burgers.  $\Omega(\varepsilon)$  définit alors la déformation élémentaire obtenue lorsque toutes les dislocations mobiles effectuent un saut thermiquement activé. En considérant que les dislocations de la forêt sont en moyenne distantes de  $\rho_f^{-1/2}$ , la loi d'Orowan (II.2) est alors donnée par l'expression suivante :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\Omega(\varepsilon)}{t_a} \quad (\text{II.5})$$

La dépendance en déformation de cette déformation élémentaire est définie par un système d'équations différentielles couplées qui s'appuie sur les deux considérations suivantes : d'une part, les densités de dislocations mobiles et de la forêt saturent à forte déformation, et d'autre part, ces densités sont couplées par des termes traduisant simultanément l'annihilation des mobiles et la multiplication de la forêt. Ce système d'équations couplées s'écrit alors :

$$\frac{d\rho_m}{d\varepsilon} = \frac{C_1}{b^2} - C_2\rho_m - \frac{C_3}{b^2}\sqrt{\rho_f} \quad (\text{II.6})$$

$$\frac{d\rho_f}{d\varepsilon} = C_2\rho_m + \frac{C_3}{b^2}\sqrt{\rho_f} - C_4\rho_f \quad (\text{II.7})$$

Les paramètres intervenant dans les équations (II.6) et (II.7) sont identifiés comme suit :

- $C_1$  traduit la multiplication des dislocations mobiles au cours de la déformation ;
- $C_2$  caractérise les annihilations et le piégeage entre dislocations mobiles ;
- $C_3$  traduit l'immobilisation des dislocations mobiles par interactions avec les dislocations de la forêt ;
- $C_4$  correspond à la restauration dynamique.

Pour résoudre ce système, il convient tout d'abord de définir les densités de dislocations initiales  $\rho_{mi}$  et  $\rho_{fi}$  ainsi que les densités à saturation  $\rho_{ms}$  et  $\rho_{fs}$ , c'est à dire les déformations élémentaires initiale et à saturation. Il est à noter que, bien que dépendant de la vitesse de

déformation, les valeurs à saturation sont considérées comme constantes. Les autres paramètres nécessaires à la résolution de ce système sont la vitesse de saturation de la densité de la forêt et le poids relatif des mécanismes contribuant à la saturation. Le premier correspond à la déformation de relaxation pour laquelle la densité de dislocation de la forêt est donnée par l'expression  $\rho_f(\varepsilon_f) = \rho_{fs} - \frac{(\rho_{fs} - \rho_{fi})}{e}$ . En ce qui concerne les mécanismes de saturation, Kubin et Estrin considèrent que l'interaction entre les dislocations mobiles et la forêt est le mécanisme prédominant, par rapport au piégeage ou à l'annihilation. Ce système non linéaire n'ayant pas de solution analytique, seule l'allure de la dépendance en déformation des densités de dislocations mobiles et de la forêt ainsi que le profil de l'évolution de  $\Omega(\varepsilon)$  sont représentés figure II-4.

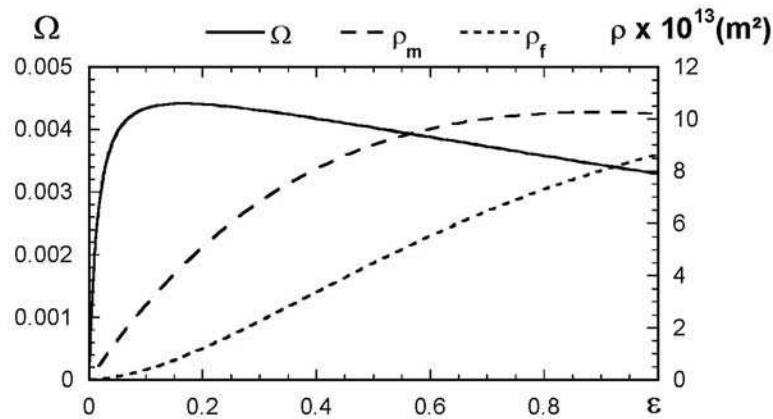


figure II-4. Evolution des densités de dislocations mobiles  $\rho_m$  et de la forêt  $\rho_f$  ainsi que de  $\Omega(\varepsilon)$  (déformation élémentaire obtenue lorsque toutes les dislocations mobiles effectuent un mouvement thermiquement activé au travers de la forêt) en fonction de la déformation. D'après Kubin et Estrin [4]

La figure II-4 illustre la dépendance de la déformation élémentaire vis à vis de la déformation. Aux faibles déformations, la croissance de  $\Omega(\varepsilon)$  est gouvernée par la multiplication des dislocations mobiles alors que pour les déformations plus importantes, la décroissance de  $\Omega(\varepsilon)$  et sa saturation sont principalement contrôlées par la densité de la forêt.

Comme l'ont analysé, dès 1949, Cottrell et Bilby [2], les interactions dynamiques impuretés-dislocations impliquent une augmentation de la résistance au glissement. Pour modéliser cet épinglage Kubin et Estrin s'appuient sur la fonction  $f(t_v, T)$  introduite par Louat [12]. Cette fonction traduit la dépendance en température et en temps de vieillissement,  $t_v$ , de la résistance induite par le « traînage » des atmosphères d'impuretés. Dans le domaine du vieillissement dynamique, le temps de vieillissement étant comparable au temps d'attente, cette fonction s'écrit :

$$f(t_v, T) = f(t_a, T) = f_0 \left\{ 1 - \exp \left[ - (t_a / \tau)^{2/3} \right] \right\} \quad (\text{II.8})$$

Dans cette expression  $f_0$  traduit la contrainte maximale d'épinglage et  $\tau$  le temps de relaxation associé à la diffusion qui dépend de l'énergie d'interaction soluté-dislocation. La dépendance de  $f(t_a, T)$  en température intervient donc par l'intermédiaire de  $\tau$ . Cette fonction de vieillissement prend donc en compte la dépendance temporelle de la concentration en soluté sur les dislocations et la force des interactions impuretés-dislocations. La contribution du vieillissement dynamique à la sensibilité totale, expression (II.3), est alors donnée par :

$$S_v(\varepsilon) = - \frac{d f(t_a, T)}{d \ln t_a} \quad (\text{II.9})$$

Compte tenu des expressions (II.3), (II.9) et (II.8) la condition d'apparition des instabilités  $S(\varepsilon) = 0$  peut s'écrire :

$$X \exp(-X) = \frac{3}{2} \frac{S_0}{f_0} \quad (\text{II.10})$$

avec  $X = (t_a / \tau)^{2/3} = \left( \frac{\Omega(\varepsilon)}{\dot{\varepsilon} \tau} \right)^{2/3}$ . Pour un couple (vitesse de déformation; température) donné,

la résolution de cette équation permet de définir un intervalle  $(X_1, X_2)$  donc  $(\Omega_1, \Omega_2)$  au sein duquel la sensibilité devient négative. Les déformations critiques pour l'apparition et la disparition des instabilités sont définies par la condition  $\Omega(\varepsilon) = \Omega_i$  ( $i = 1, 2$ ). La figure II-5 illustre deux exemples de détermination des frontières du domaine des instabilités.

La pierre angulaire du « dislocation model » est la déformation élémentaire  $\Omega(\varepsilon)$  obtenue lorsque toutes les dislocations mobiles effectuent un saut thermiquement activé à travers la forêt. Grâce à cette grandeur, ce modèle traduit le rôle fondamental de l'évolution des densités de dislocations mobiles et de la forêt dans l'interprétation des phénomènes de vieillissement. Le « dislocation model » proposé par Kubin et Estrin présente donc l'intérêt d'expliquer les différents comportements de vieillissement dynamique observés expérimentalement sans pour autant entrer dans le débat autour de l'effet des lacunes dans le mécanisme de diffusion.

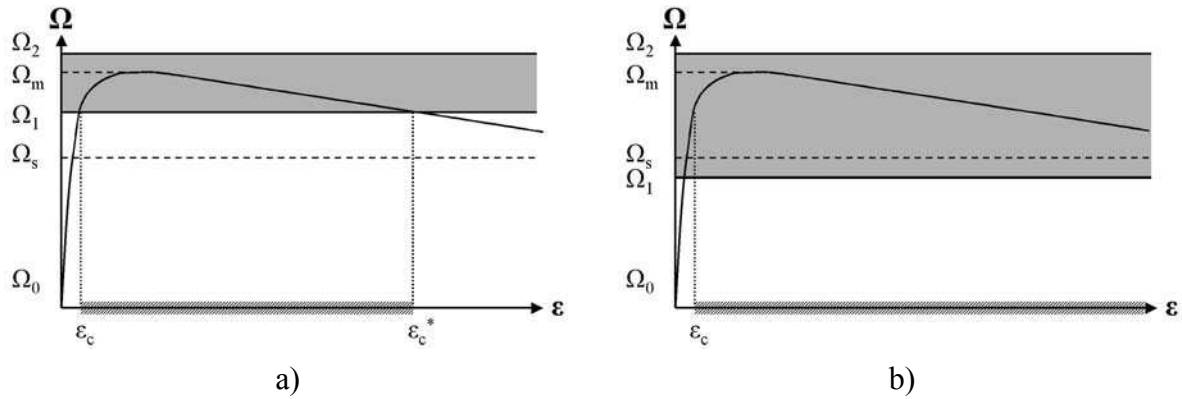


figure II-5. Détermination du domaine d'existence des instabilités par le « dislocation model ». Avec  $\Omega_0$ ,  $\Omega_m$  et  $\Omega_s$  valeurs initiale, maximale et à saturation de  $\Omega(\varepsilon)$ ,  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  déformations élémentaires satisfaisant la condition  $S(\varepsilon) = 0$ ,  $\varepsilon_c$  et  $\varepsilon_c^*$  déformations critiques d'apparition et de disparition du PLC.

a)  $\Omega_s < \Omega_1 < \Omega_m$  et  $\Omega_2 > \Omega_m$

b)  $\Omega_1 < \Omega_s$  et  $\Omega_2 > \Omega_m$

### II.1.2 Modélisation du vieillissement statique

Après avoir décrit les mécanismes à l'origine du vieillissement dynamique, nous analysons le vieillissement statique qui se rapporte à l'apparition d'une discontinuité de la limite d'élasticité après une déformation plastique. Le principe de l'essai explique le terme statique communément utilisé pour décrire ce type de manifestation des interactions soluté-dislocations. En effet, après une déformation nominale  $\varepsilon_p$  à une température  $T$  donnée, l'éprouvette est maintenue, « vieillie », à un niveau de contrainte inférieur à celui atteint à  $\varepsilon_p$  pendant une durée  $t_m$  à la température  $T$ . A la remise en charge à la vitesse de déformation initiale apparaît alors une discontinuité de la limite d'élasticité appelée « effet  $\Delta\sigma$  » par Combette et Grilhé [13]. La figure II-6 donne une représentation schématique de cet essai sur une courbe contrainte-temps. Un tel essai est réalisé à une température telle que les impuretés ne peuvent piéger les dislocations en mouvement pendant leur déplacement. L'épinglage des dislocations s'effectue alors par diffusion durant le temps de maintien, le pic de vieillissement statique mesuré à la remise en charge traduit le désancrage des dislocations. Dans le cas d'un essai de traction simple, le matériau se comporte alors comme une solution solide métal-impureté avec un soluté immobile par rapport aux dislocations. Le terme statique permet donc de distinguer ce phénomène du vieillissement dynamique qui correspond à un réancrage dynamique des dislocations mobiles par leur atmosphère de Cottrell. En effet, dans le cas du vieillissement dynamique, le vieillissement se fait pendant le temps d'attente sur les obstacles. Le temps de vieillissement est donc indirectement imposé par vitesse de déformation plastique. En revanche, dans le cas du vieillissement statique, le temps de vieillissement est en

principe directement imposé par le maintien sous faible charge. Dans cette partie, nous rappelons tout d'abord les mécanismes qui gouvernent le vieillissement statique. Dans un second paragraphe, nous explorons l'influence des paramètres clefs contrôlant cet effet afin d'orienter notre étude expérimentale.

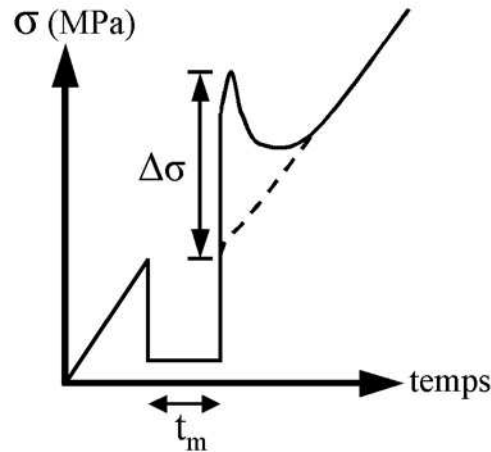


figure II-6. Illustration schématique d'un essai de vieillissement statique sur une courbe contrainte-temps, il apparaît une discontinuité de la limite d'élasticité  $\Delta\sigma$  lors de la remise en charge après un maintien à faible contrainte durant un temps  $t_m$ . En l'absence de vieillissement, le comportement du matériau est représenté par la courbe en pointillée.

### II.1.2.1 Modélisation

Dans les modèles classiques de vieillissement statique, la discontinuité de la limite d'élasticité est proportionnelle au nombre d'atomes de soluté ségrégés sur les dislocations. Friedel [6] évalue que le temps nécessaire pour atteindre une teneur en impureté  $C$  autour d'une dislocation de longueur unité dans un matériau contenant une concentration initiale de soluté  $C_0$  est de l'ordre de :

$$t \approx \frac{b^2 k T}{D |W_M|} \left( \frac{C}{\pi C_0} \right)^{3/2} \quad (\text{II.11})$$

où  $b$  est la norme du vecteur de Burgers,  $k$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température de l'essai,  $D$  le coefficient de diffusion du soluté et  $W_M$  l'énergie d'interaction dislocation-impuretés. Connaissant la cinétique de ségrégation du soluté, l'expression du pic de vieillissement statique est alors donnée par l'expression suivante :

$$\Delta\sigma = k_\rho \left[ \frac{t}{T} \exp\left(-\frac{U}{kT}\right) \right]^{2/3} \quad (\text{II.12})$$

où  $k_\rho$  est une constante qui dépend de la densité de dislocation  $\rho$  et  $U$  est l'énergie d'activation du processus de diffusion. Il ressort de l'expression (II.12) que  $\Delta\sigma$  varie suivant loi en  $t^{2/3}$  et la dépendance du pic de vieillissement vis à vis de la pré-déformation s'exprime à travers la constante  $k_\rho$  qui est reliée à la densité de dislocations.

Récemment, Kubin *et al.* [14] ont réexaminé le phénomène de vieillissement statique à la lumière du « dislocation model » [4] en s'appuyant sur les travaux de McCormick [15]. L'avantage du « dislocation model » est de décrire les mécanismes de vieillissement dynamique en prenant en compte l'évolution des densités de dislocations mobiles et de la forêt. Le travail de McCormick permet d'éclaircir un point crucial du vieillissement statique, à savoir le caractère transitoire de la cinétique de vieillissement. Ces analyses, initialement conçues pour décrire le vieillissement dynamique, s'appliquent au cas statique dans la mesure où cet effet n'a de statique que le nom. En effet, durant la recharge, des effets dynamiques peuvent influencer de façon significative la valeur du pic de vieillissement. Lors de la remise en charge, l'augmentation de la vitesse de déformation plastique, inversement proportionnelle au du temps d'attente (II.5), provoque une diminution de la concentration d'équilibre au voisinage des dislocations en atomes de soluté sur les dislocations. Le caractère transitoire de ce phénomène s'explique par le fait que la composition en soluté ne peut s'accorder instantanément avec la vitesse de déformation, mais nécessite un temps  $t_a$ . A partir de ces analyses, McCormick [15] établit une distinction entre le temps d'attente sur les dislocations et le temps effectif de vieillissement  $t_v$ . La cinétique de relaxation du temps de vieillissement peut donc être décrite par :

$$\dot{t}_v = \frac{t_a - t_v}{t_a}. \quad (\text{II.13})$$

Le système proposé par Kubin *et al.* [14] pour décrire l'évolution de la variation de la contrainte d'écoulement,  $\sigma$ , après la recharge comporte les trois équations différentielles couplées suivantes :

$$C\dot{\sigma} = \dot{\varepsilon}_a - \dot{\varepsilon} \quad (\text{II.14})$$

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_0 \exp\left\{\left(\sigma - h\varepsilon - f(t_v)\right)/S_0\right\} \quad (\text{II.15})$$

$$\dot{t}_v = 1 - \frac{\dot{\varepsilon}t_v}{\Omega(\varepsilon)} \quad (\text{II.16})$$

Dans ces équations,  $\dot{\varepsilon}$  désigne la vitesse de déformation plastique alors que  $\dot{\varepsilon}_a$  correspond à la vitesse de déformation imposée lors de l'essai. La première équation correspond à l'équation de la machine où  $C$  représente la compliance effective de l'ensemble composé de la machine de traction et de l'éprouvette. Dans l'expression (II.15),  $S_0$  correspond à la sensibilité de la contrainte d'écoulement à la vitesse de déformation en l'absence d'effets. Le coefficient d'écrouissage, noté  $h$ , est considéré comme constant. Dans cette équation, le terme  $\varepsilon$  représente la déformation cumulée depuis le début de l'essai, et pas uniquement ce qui se passe après la recharge. L'ultime paramètre correspond à la fonction d'épinglage  $f(t_a, T)$  décrite par l'équation (II.8). Enfin, l'expression (II.16) correspond à l'introduction des relations liant la vitesse de déformation au temps d'attente (II.4) et (II.5) dans la formule de McCormick (II.13). Afin de tenir compte de la déformation ayant précédé l'essai de vieillissement statique, l'expression du temps de vieillissement effectif au début de la modélisation,  $t_v^*$ , est donnée par  $t_v^* = t_m - t_a^*$ . Dans cette relation,  $t_a^*$  représente le temps d'attente durant la pré-déformation et  $t_m$  le temps de maintien défini sur la figure II-6.

### II.1.2.2 Etude de l'influence des différents paramètres expérimentaux

L'un des objets de cette étude est de caractériser les effets de l'hydrogène sur le comportement en traction du nickel et d'un alliage binaire nickel-16% de chrome. Les essais de vieillissement permettent d'analyser l'influence du soluté sur le comportement collectif des dislocations en terme de traînage des atmosphères de Cottrell. Les développements apportés par Kubin et Estrin en matière de compréhension des mécanismes de vieillissement permettent ainsi de simuler le vieillissement statique grâce au système d'équations couplées (II.14), (II.15) et (II.16). Nous allons, dans ce paragraphe, utiliser cette modélisation afin d'orienter notre étude expérimentale en analysant en particulier l'influence de la température et du temps de maintien sur le comportement du pic de vieillissement. Afin d'évaluer l'influence de ces paramètres expérimentaux sur l'allure des courbes de traction à la recharge, nous avons choisi de conserver les valeurs numériques utilisées par Kubin *et al.* [14]. Ces données sont rappelées dans le tableau II-1.

*tableau II-1 : Valeurs numériques utilisées par Kubin et al. [14] dans la modélisation de l'allure des courbes de traction lors d'un essai de vieillissement statique.*

$\sigma_0$ (MPa)	$\varepsilon_0$ (%)	$1/C$ (MPa)	$h$ (MPa)	$S_0$ (MPa)	$\dot{\varepsilon}_a$ (s <sup>-1</sup> )	$\dot{\varepsilon}_0$ (s <sup>-1</sup> )
15	5	$5 \times 10^4$	$10^3$	5	$10^{-4}$	$10^{-7}$

Le temps de relaxation  $\tau$  associé à la diffusion des atomes de soluté est le paramètre clef qui reflète l'incidence de la température sur le comportement du matériau. Cette variable, inversement proportionnelle à la température, nous permet de modéliser l'évolution du pic de



vieillissement en fonction de la température d'essai. La figure II-7 a) met en évidence l'absence de pic de vieillissement à très basse ainsi qu'à très haute température. Dans l'intervalle considéré, il apparaît que l'amplitude du pic augmente dans un premier temps puis diminue à mesure que  $\tau$  décroît alors que la contrainte d'écoulement « post-transitoire » augmente sous l'influence des effets du vieillissement dynamique. Pour  $\tau = 10^3$  s, le soluté présent dans le matériau n'a pas le temps de piéger les dislocations en mouvement, tout se passe comme si l'on avait une solution solide métal-impureté avec un soluté immobile par rapport aux dislocations. Par contre, à haute température, pour des temps de relaxation faibles, les dislocations ne peuvent s'échapper de leurs atmosphères de soluté, ce qui se traduit par l'absence de pic de vieillissement et l'augmentation de la contrainte d'écoulement dans la mesure où les dislocations « traînent » en permanence leurs nuages d'hydrogène. Le second paramètre analysé, le temps de maintien, est un paramètre qui influe sur la cinétique de ségrégation du soluté sur les dislocations à l'arrêt. La figure II-7 b) illustre l'influence du temps de maintien lors d'un essai de vieillissement statique. Il apparaît que l'intensité du crochet de traction à la recharge croît avec le temps de maintien. Le pic de vieillissement est une fonction croissante du temps de maintien. Pour des temps élevés  $\Delta\sigma$  tend vers une valeur à saturation.

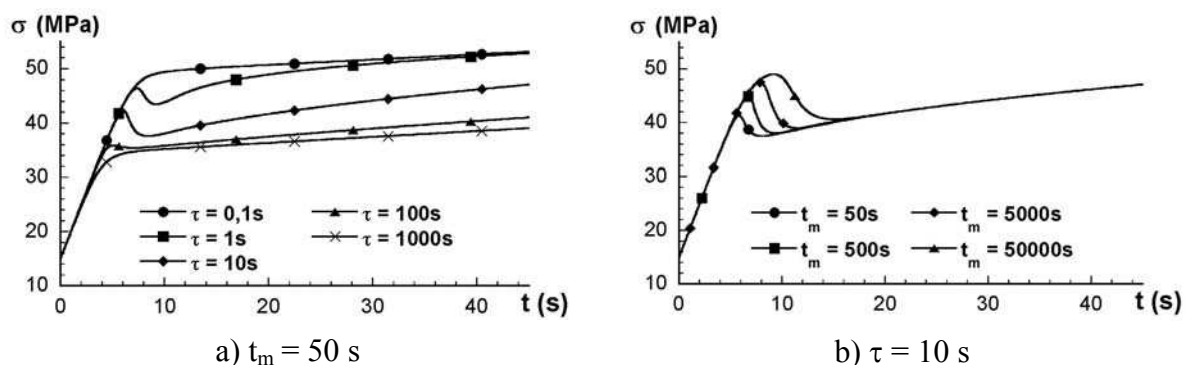


figure II-7. Allure des courbes simulées contrainte-temps à la recharge pour une valeur de la contrainte maximale d'épingle  $f_0 = 15$  MPa en fonction :

- du temps de relaxation  $\tau$ , inversement proportionnel à la température, pour un temps de maintien de 50 s,
- du temps de maintien  $t_m$  pour un temps de relaxation de 10 s.

Considérons maintenant un essai de vieillissement statique effectué pour un couple (vitesse de déformation; température) donné et faisons varier la valeur de la contrainte d'épingle maximale  $f_0$  définie par la formule de Louat (II.8). La figure II-8 met en évidence la croissance et la saturation du pic de vieillissement statique. Il apparaît alors que le pic de vieillissement atteint une valeur à saturation de l'ordre de 80% de  $f_0$ . Ces résultats montrent

que la valeur de la contrainte maximale d'épinglage peut être estimée à partir de la mesure du pic de vieillissement  $\Delta\sigma$  pour des temps de maintien élevés (ici supérieurs à  $10^5$  s).

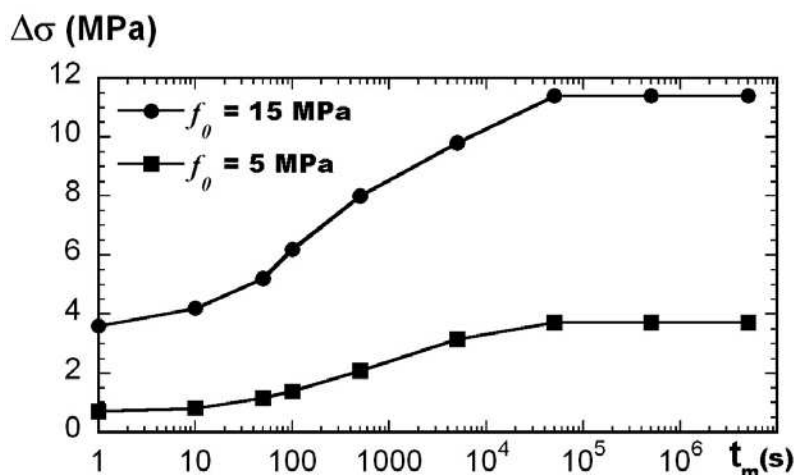


figure II-8. Variation simulée du pic de vieillissement  $\Delta\sigma$  en fonction du temps de maintien  $t_m$  pour deux valeurs de la contrainte maximale d'épinglage  $f_0$  (5 et 15 MPa) pour un temps de relaxation de 10 s.

Ce modèle permet ainsi de prédire quantitativement la forme et l'amplitude des crochets de traction qui apparaissent à la recharge après un temps de vieillissement contrôlé. Bien que les données injectées dans le « dislocation model » ne correspondent pas au couple matériau-impureté étudié, ces résultats illustrent qualitativement les effets observés par Combette et Grilhé [13] dans le cas du nickel hydrogéné. Expérimentalement, nous allons donc nous attacher à évaluer la force d'épinglage à saturation à partir de la mesure du pic de vieillissement statique  $\Delta\sigma$  pour différentes teneurs en hydrogène.

## II.2 Caractérisation expérimentale du traînage des atmosphères de Cottrell

Notre étude s'inscrit dans une démarche d'évaluation expérimentale des mécanismes de déformation affectés par l'hydrogène dans les CFC en nous appuyant sur des matériaux et des essais « modèles ». Comme nous venons de le voir dans la partie II.1, les essais de vieillissement dynamique et statique sont de bons marqueurs macroscopiques des interactions soluté-dislocations. Dès le début des années 60, Boniszewski et Smith [16] ont caractérisé l'existence du phénomène Portevin-Le Chatelier dans du nickel polycristallin chargé en hydrogène. Par la suite, Windle et Smith [17] ainsi que Latanision et Staehle [18] ont étudié ces effets de vieillissement dynamique sur des monocristaux de nickel, et Blakemore [19] a exploré les effets PLC dans le cas d'alliages nickel-cobalt, nickel-cuivre et nickel-zinc. Une étude poussée du PLC et du vieillissement statique dans du nickel hydrogéné a été réalisée par

Combette et Grilhé [13] dans les années 70. Nous étudions du nickel pur et un alliage à base de nickel contenant 16% massique de chrome, hydrogénés par voie gazeuse. Dans ce paragraphe, nous mesurons l'évolution du pic de vieillissement statique pour différentes teneurs en hydrogène. Ce paragraphe est décomposé en trois parties. La première partie est consacrée aux matériaux analysés ainsi qu'à la méthode de chargement en hydrogène choisie. Dans un deuxième temps, nous présentons les différentes techniques expérimentales et d'analyse utilisées pour la mesure de la sensibilité à la vitesse de déformation et la caractérisation du pic de vieillissement. Pour finir, nous détaillons les résultats expérimentaux obtenus. Ces résultats s'articulent autour de trois points, à savoir la détermination du domaine de vieillissement dynamique, les conséquences du transport de l'hydrogène sur la ductilité de l'alliage binaire Ni-16Cr et, enfin, l'analyse des essais de vieillissement statique.

### **II.2.1 Matériaux et chargements**

Dans cette étude, nous avons choisi de caractériser les effets de vieillissement induit par l'hydrogène pour deux matériaux, du nickel pur et un alliage binaire à base de nickel contenant 16% massique de chrome. Ces matériaux sont de pureté contrôlée afin de nous affranchir le plus possible des effets indésirables liés à la présence d'impuretés. De plus, nous avons accordé un intérêt tout particulier au mode de chargement en hydrogène. Dans cette partie, nous caractérisons tout d'abord les matériaux utilisés, puis nous décrivons la technique de chargement choisie.

#### **II.2.1.1 Caractérisation des matériaux**

Les éprouvettes utilisées dans cette étude sont élaborées à partir de matériaux purs, à savoir du nickel 270 produit par Special Metals et un alliage binaire à base de nickel contenant 16% massique de chrome élaboré au département « Métaux de Haute Pureté » de l'Ecole des Mines de Saint Etienne. En ce qui concerne la composition de l'alliage, notre choix s'est porté sur une teneur de 16% de chrome afin d'étudier un matériau modèle de composition proche des alliages 600 contenant 15 à 17% de chrome et 8 à 10% de fer. Nous nous sommes orientés vers cet alliage à base de nickel suite au travail de Foct [20] qui a caractérisé expérimentalement le rôle de l'hydrogène dans les mécanismes d'endommagement par CSC des alliages 600 en milieu PWR.

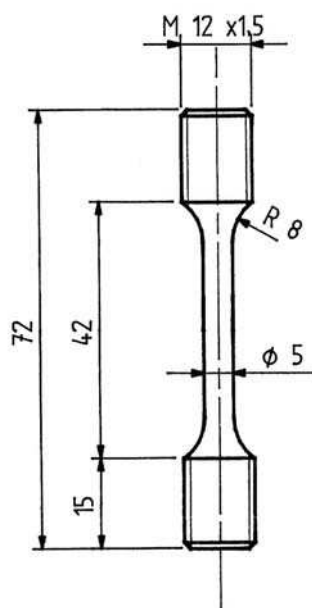
Les éprouvettes de nickel 270 proviennent de barreaux de diamètre 16 mm mis en forme par Special Metals. L'alliage est élaboré à partir de lingots de nickel et de chrome purs au sein du laboratoire de l'Ecole et les barres d'alliage sont mises en forme à 1473 K avant de passer à la machine à rétreindre à froid. Les analyses chimiques sont pratiquées sur des

rondelles et des copeaux récupérés à divers endroits des barres lors de l'usinage. Le tableau II-2 montre une absence de pollution majeure dans les différentes barres utilisées.

*tableau II-2 : Composition chimique des matériaux utilisés lors des essais sur des éprouvettes polycristallines en ppm massique.*

	C	O	N	S	P
Ni 270	< 10	< 10	< 10	< 5	< 25
Ni-16Cr	< 15	< 10	< 10	< 10	< 25

A partir de ces barreaux, nous avons fait usiner des éprouvettes cylindriques de diamètre 5 mm et de longueur utile 25 mm. Les caractéristiques géométriques de ces éprouvettes sont présentées sur la figure II-9. Ces éprouvettes subissent alors un recuit d'homogénéisation à 800°C durant 30 minutes suivi d'une trempe à l'eau.



*figure II-9. Schéma des éprouvettes cylindriques polycristallines.*

L'analyse de la taille de grains des différentes barres et éprouvettes est effectuée en plusieurs points. Les observations illustrées sur la figure II-10 sont obtenues après polissage au micron et une attaque chimique de 5 à 10 s par un mélange constitué de 50% de HCl, 50% de H<sub>2</sub>O et de 100g/l de CuSO<sub>4</sub>. Il ressort des observations que la taille moyenne des grains est supérieure à 250 µm pour le nickel et de l'ordre de 100 µm pour l'alliage Ni-16Cr.

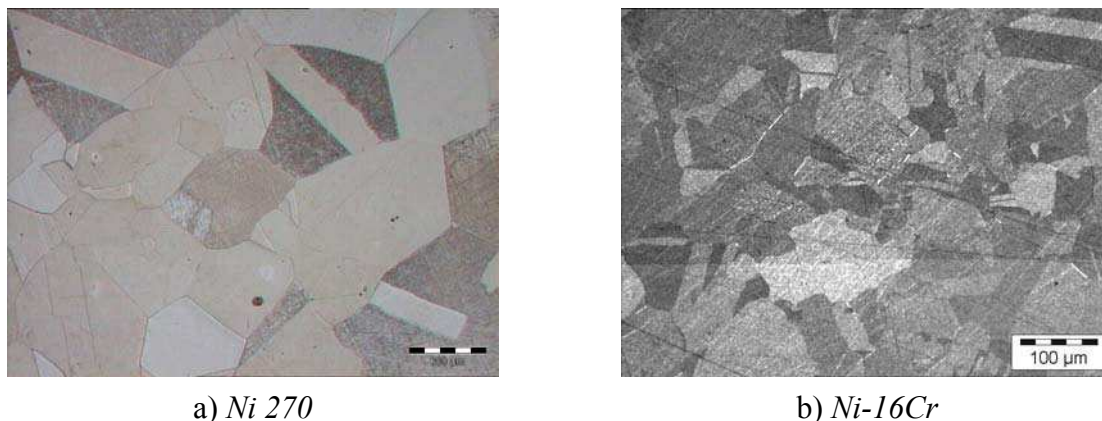


figure II-10. Microstructure des matériaux analysés : a) nickel et b) binaire Ni-16Cr.

### II.2.1.2 Technique de chargement en hydrogène

Dans une démarche visant à travailler dans des conditions « modèles », nous désirons pouvoir d'une part maîtriser le taux d'hydrogène et d'autre part obtenir une concentration de soluté la plus homogène possible. De plus, le choix du mode de chargement est un paramètre susceptible d'altérer les interactions hydrogène-dislocations. Après avoir brièvement rappelé les différents types de chargement possibles, nous détaillerons les avantages de notre méthode.

La technique d'hydrogénation la plus fréquemment employée est le chargement cathodique. Cependant, l'un des risques inhérents à ce mode de chargement est la formation d'hydrides en surface de l'échantillon. De tels composés perturbent alors le coefficient de diffusion de l'hydrogène puisque celui-ci migre alors dans une structure biphasée. De plus, ils influent sur les courbes de traction (remise en solution de l'hydrogène après les premiers pour-cent de déformation). L'autre inconvénient, signalé par Boniszewski et Smith [16], concerne l'apparition de gradients de concentration d'hydrogène dans l'éprouvette. Une telle méthode présente toutefois l'avantage d'introduire une grande quantité d'hydrogène (supérieure à 0,2% atomique).

C'est pour ces raisons que Blakemore [21], puis Combette et Azou [22] lui préfèrent le chargement à haute température sous atmosphère d'hydrogène pur à la pression atmosphérique suivi d'une trempe à l'eau. Cette technique permet de maîtriser le taux d'hydrogène introduit par le contrôle de la température. En effet, comme la solubilité est une fonction croissante de la température, il devient alors possible d'accroître la teneur en hydrogène en augmentant la température du chargement. L'inconvénient est que plus la température augmente, plus le risque de désorption de l'hydrogène lors de la trempe devient important. La teneur en hydrogène obtenue par Combette et Grilhé [13], dans les conditions optimales de chargement, à savoir 800°C pendant 1 heure, n'est alors que de 405 ppm atomique.

La technique choisie permet d'optimiser la méthode mise en œuvre par Combette et Azou en travaillant à température intermédiaire et à haute pression. Pour ce faire, nous bénéficions des infrastructures d'Usinor Industeel au Creusot, à savoir un autoclave permettant de faire des chargements sous forte pression d'hydrogène à des températures intermédiaires pour lesquelles les risques de désorption sont réduits. Il est alors possible d'introduire des quantités d'hydrogène proches des taux obtenus par chargement cathodique. L'un des paramètres clefs influant sur la quantité d'hydrogène introduite est la pression imposée. En effet, plus la pression partielle d'hydrogène est élevée, plus on augmente la concentration en soluté dans les échantillons. Afin d'étudier l'influence de la concentration en hydrogène sur les effets de vieillissement, nous réalisons deux types de chargement dont les caractéristiques sont présentées dans le tableau II-3. Par la suite, nous distinguerons ces deux conditions par les appellations « niveau bas » et « haut », les teneurs en hydrogène obtenues suivant les conditions de chargement sont données dans le tableau II-3. Les dosages sont effectués par extraction sous vide en phase solide à 900°C par les laboratoires de la société Imphy. Après chargement, les échantillons sont refroidis 2 minutes à l'air puis subissent une trempe à l'eau. Suite à ces opérations, les échantillons sont conservés dans l'azote liquide jusqu'au moment où ils sont montés sur la machine de traction. Nous nous sommes assurés par une analyse RX sur des pions de nickel et d'alliages chargés en hydrogène que cette technique de chargement ne conduit pas à la formation d'hydrures. En outre, nous avons comparé les paramètres de maille des matériaux avec et sans hydrogène. En l'absence d'hydrogène, les paramètres de mailles du nickel et de l'alliage binaire Ni-16Cr valent respectivement 3,524 Å et 3,543 Å. Après un chargement conduisant à un « niveau haut » en hydrogène, nous constatons une absence de modification significative du paramètre de maille.

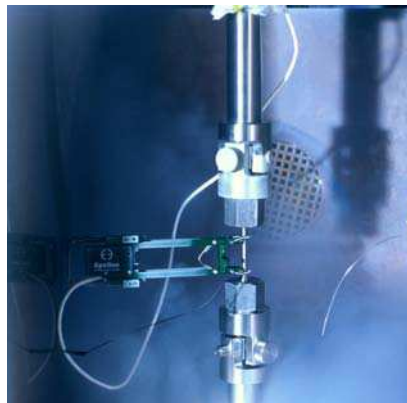
*tableau II-3 : Conditions de chargement des échantillons et teneurs en hydrogène obtenues dans ces conditions pour le nickel et l'alliage binaire Ni-16Cr.*

	Température	Pression	Durée	Ni 270	Ni-16Cr
<b>Niveau bas</b>	350°C	100 bars	48 heures	<b>1500 ppm at.</b>	<b>1500 ppm at.</b>
<b>Niveau haut</b>	450°C	150 bars	48 heures	<b>1900 ppm at.</b>	<b>1900 ppm at.</b>

Afin de comparer des échantillons ayant la même histoire thermique, toutes les éprouvettes non chargées subissent un traitement thermique identique à celui induit par le chargement en hydrogène. Ainsi, pour comparer le comportement des éprouvettes hydrogénées au niveau « haut », les éprouvettes non chargées ont donc subi un traitement de 48 heures à 450°C sous argon, alors que pour « simuler » le chargement dit « bas » les éprouvettes ont subi un traitement de 48 heures à 350°C. Compte tenu du recuit d'homogénéisation, nous ne constatons pas de différences sur les courbes de traction entre les éprouvettes ayant subi ces deux traitements de simulations.

### II.2.2 Techniques d'analyse

Pour cette étude, nous avons mis en œuvre deux types de mesures afin d'évaluer d'une part la sensibilité à la vitesse et d'autre part le pic de vieillissement statique. Les essais sont réalisés sur une machine hydraulique INSTRON 8502 de capacité ajustable de 20 kN ou de 100 kN. Les différents signaux sont numérisés et traités grâce au logiciel FAST TRACK 2 qui permet, par ailleurs, de gérer le pilotage de la machine. Les essais de vieillissement étant réalisés à basse température, nous effectuons les tractions dans une enceinte climatique PYROX EC05. Le chauffage par convection et le refroidissement par éjection d'un brouillard d'azote permettent d'atteindre des températures comprises entre  $-150$  et  $+500^{\circ}\text{C}$  avec une précision de l'ordre du degré. Le contrôle de la régulation de la température est réalisé par le thermocouple interne de l'enceinte thermique et vérifié par un thermocouple collé au montage à proximité de l'éprouvette. Les mesures de déformation sont effectuées par un extensomètre Epsilon d'espacement initial entre les couteaux de 25 mm et de débattement maximal  $+50\% - 25\%$  fonctionnant dans le domaine des basses températures (8 K à 373 K). Le dispositif expérimental est présenté figure II-11.



*figure II-11. Dispositif expérimental utilisé pour les essais de vieillissement.*

Pour toutes les mesures expérimentales à basse température, la descente en température se fait à charge nulle imposée afin d'éviter de provoquer toute pré-déformation par contraction de l'éprouvette et du montage. Nous débutons les analyses après un maintien à la température considérée afin de nous assurer que l'équilibre thermique est atteint au niveau du montage de traction. Dans ce paragraphe, nous détaillons tout d'abord les techniques de mesure employées dans la caractérisation de la sensibilité à la vitesse, puis nous décrivons la technique de mesure du pic de vieillissement. Il est à noter que, contrairement à Combette et Grilhé [13], nous avons cherché à optimiser le nombre de mesures par éprouvette de traction. Une éprouvette n'est donc pas associée à une mesure unique mais à une série de mesures de

sensibilité et de vieillissement statique. Aussi, pour ne pas perturber nos analyses, nous avons toujours veillé à ce que deux mesures consécutives soient espacées de 3% de déformation plastique.

### II.2.2.1 Mesure de la sensibilité de la contrainte d'écoulement à la vitesse de déformation

Les essais de traction sont réalisés sur les éprouvettes à différentes températures avec une vitesse de déformation imposée de base :  $\dot{\varepsilon}_a = 10^{-2} s^{-1}$ . Pour un même essai, nous mesurons de la sensibilité à la vitesse  $S(\varepsilon)$  à diverses valeurs de déformation plastique. Nous effectuons des sauts d'amplitude 5 vers le bas comme le montre la figure II-12. Ces sauts, entre  $10^{-2} s^{-1}$  et  $2.10^{-3} s^{-1}$ , sont réalisés à 5 et 11,5% de déformation plastique. Le retour à la vitesse de déformation initiale se fait après 1% de déformation plastique. Nous optons pour des sauts d'amplitude négative afin de ne pas déclencher prématurément l'apparition d'instabilités pour les valeurs négatives de la sensibilité.

Pour une sensibilité négative non nulle, il apparaît un incrément de la contrainte d'écoulement de part et d'autre du régime transitoire. La sensibilité dépend de la vitesse de déformation, en toute rigueur il convient de la définir comme suit :

$$S(\varepsilon) = \lim_{\delta \dot{\varepsilon}_p \rightarrow 0} \left( \frac{\delta \sigma_f}{\delta \ln \dot{\varepsilon}_p} \right) \quad (II.17)$$

avec  $\delta \sigma_f$  qui représente l'incrément de la contrainte et  $\delta \ln \dot{\varepsilon}_p$  l'incrément de vitesse de déformation plastique. En pratique, nous évaluons les incréments de contraintes par des sauts de vitesse d'amplitude finie. La sensibilité à la vitesse peut être mesurée à partir des courbes par l'expression suivante :

$$S(\varepsilon) = \frac{\Delta \sigma}{\Delta \ln(\dot{\varepsilon}_p)} \quad (II.18)$$

La figure II-12 représente la méthode utilisée pour évaluer la sensibilité dans le cas d'une sensibilité positive de la contrainte d'écoulement à la vitesse de déformation.



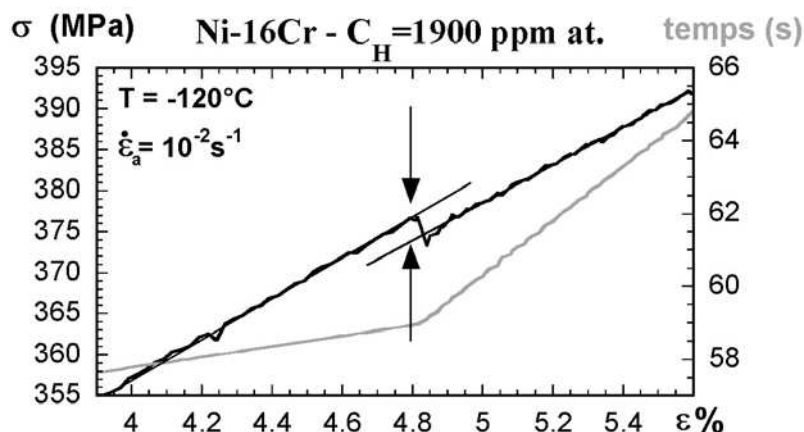


figure II-12. Détermination expérimentale de la sensibilité de la contrainte d'écoulement à la vitesse de déformation. A l'instant du saut de vitesse, la sensibilité à la vitesse est alors évaluée à l'aide de l'équation (II.18). Ici, pour un saut de vitesse entre  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  et  $2.10^{-3} \text{ s}^{-1}$  à  $-120^\circ\text{C}$ , la sensibilité à 5% de déformation plastique vaut 1.85 MPa pour un alliage Ni-16Cr contenant 1900 ppm atomique d'hydrogène.

#### II.2.2.2 Détermination du pic de vieillissement statique $\Delta\sigma$

L'essai de vieillissement statique peut être décomposé en trois phases comme l'illustre figure II-6. L'essai de traction est arrêté après une déformation nominale  $\epsilon_p$  (pour une contrainte  $\sigma_1$ ). L'éprouvette est alors maintenue pendant un temps  $t_m$  sous une contrainte  $\sigma_0$ . Afin de contrôler au mieux la reproductibilité des effets dynamiques inhérents à tout changement de vitesse de déformation, nous imposons la durée de la descente à  $\sigma_0$ . Enfin, l'essai est repris à la vitesse de déformation initiale. Il apparaît alors une discontinuité de la contrainte de valeur  $\sigma_4$ . La figure II-13 représente une courbe de vieillissement qui permet de mettre en évidence les différentes mesures possibles de la discontinuité  $\Delta\sigma$ . Nous évaluons  $\Delta\sigma$  par la différence  $\sigma_4 - \sigma_3$  conformément à la méthode utilisée par Combette et Grilhé [13].  $\sigma_3$  est la valeur de la contrainte obtenue en extrapolant la courbe contrainte-déformation au niveau du pic de contrainte. Cette définition de  $\Delta\sigma$  permet, contrairement à d'autres mesures telles que  $\sigma_4 - \sigma_1$  ou  $\sigma_4 - \sigma_2$ , de négliger l'effet de relaxation inhérent au vieillissement de l'éprouvette.

Toutes les éprouvettes sont « vieilles » pendant un temps de maintien variable sous une force imposée de 0,5 kN et ce, quel que soit le niveau de contrainte atteint avant la décharge. Contrairement à Combette et Grilhé qui utilisent des éprouvettes distinctes, nous mesurons  $\Delta\sigma$  à différentes valeurs de déformation plastique pour un même essai de traction. Les mesures du pic de vieillissement sont effectuées à 1, 7, 12 et 20% de déformation plastique. Nous estimons que le transitoire faisant suite au vieillissement à une déformation donnée ne perturbe pas la mesure du pic suivant compte tenu de l'écart choisi entre les différentes mesures. Au cours de cette étude, nous faisons varier le temps de maintien entre

10 s et 30000 s. Nous ne pouvons atteindre des temps de maintien supérieurs compte tenu de la quantité d'azote liquide disponible afin de maintenir dans l'enceinte des températures cryogéniques. Il est à noter que pour les temps de maintien élevés les variations de températures subies par les éprouvettes sont inférieures au degré.

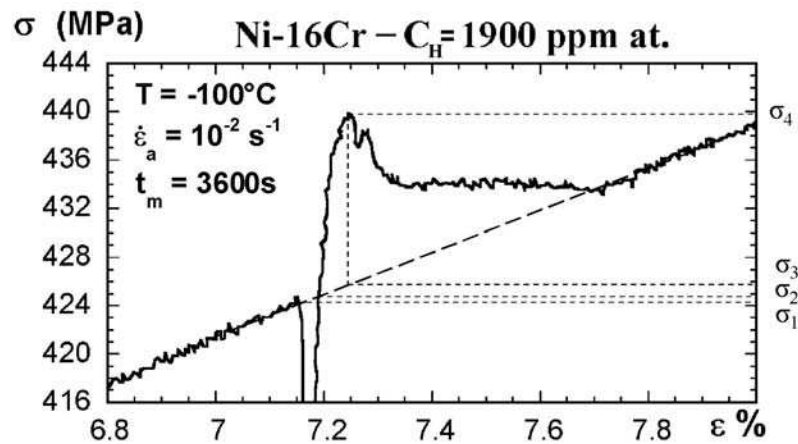


figure II-13. Mesure expérimentale du pic de vieillissement sur une éprouvette d'alliage Ni-16Cr contenant 1900 ppm atomique d'hydrogène à  $-100^{\circ}\text{C}$ , pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  et un temps de maintien de 3600 s. Nous utiliserons la convention de mesure proposée par Combette et Grilhé [13], à savoir  $\Delta\sigma = \sigma_4 - \sigma_3$ . Ici, le résultat est 15,4 MPa.

### II.2.3 Résultats

Nous avons rappelé, dans le paragraphe II.1, les fondements physiques du vieillissement dynamique et statique. Il en ressort que le paramètre clef permettant de se situer dans le domaine température-vitesse de déformation est la sensibilité de la contrainte d'écoulement à la vitesse de déformation,  $S(\epsilon)$ . De plus, en nous appuyant sur le « dislocation model » développé par Kubin et Estrin [14], nous utilisons les essais de vieillissement statique afin de caractériser la contrainte d'épinglage des dislocations par leur atmosphère de Cottrell. Le préalable à la conduite d'essais de vieillissement statique est la définition du domaine de température et de vitesse de déformation approprié. Dans un premier temps, nous caractérisons donc le domaine du creux de sensibilité dans le cas du nickel et de l'alliage hydrogéné aux niveaux « haut » et « bas » définis par le tableau II-3. Nous examinons ensuite une conséquence du transport de l'hydrogène par les dislocations mobiles, à savoir la fragilisation de l'alliage Ni-16Cr. Enfin, nous présentons les résultats obtenus dans l'étude du vieillissement statique sur nos matériaux en fonction des teneurs en hydrogène.

### II.2.3.1 Détermination du domaine de vieillissement dynamique

La détermination du creux de sensibilité  $S(\varepsilon)$  est une condition indispensable à l'étude des effets de vieillissement dans la mesure où il définit le domaine des interactions dynamiques entre les dislocations et les atomes de soluté. Pour une vitesse de déformation donnée, la détermination de la température inférieure du domaine de sensibilité négative permet de définir la température à laquelle les essais de vieillissement statique sont réalisés. Notre objectif a donc été de maximiser cette température afin de pouvoir accélérer la diffusion de l'hydrogène tout en restant en dessous du domaine du PLC, donc à  $S(\varepsilon) = 0$ . En conséquence, nous avons optimisé la vitesse de déformation appliquée en prenant garde à ne pas passer à côté du domaine des interactions dynamiques et en veillant à ce que les transitoires ne « consomment » pas trop de déformation. En outre, l'augmentation de la vitesse de déformation permet d'augmenter la fraction de  $f_0$  mesurée par  $\Delta\sigma$  à la saturation en limitant le désancrage pendant la recharge. Les mesures de sensibilité sont effectuées suivant la procédure décrite dans le paragraphe II.2.2.1.

Dans le cas de l'alliage Ni-16Cr, la figure II-14 illustre l'évolution de la sensibilité  $S(\varepsilon)$  en fonction de la température. Pour une concentration donnée, nous avons analysé l'influence de la déformation plastique à laquelle est effectuée la mesure sur l'allure du creux de sensibilité. La figure II-14 a) représente l'évolution de  $S(\varepsilon)$  pour un alliage contenant 1500 ppm atomique d'hydrogène pour des mesures à 5 et 11,5% de déformation plastique. Il apparaît que pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  le creux de sensibilité est situé à une température de l'ordre de  $-70^\circ\text{C}$ . Au creux de sensibilité, la valeur de  $S(\varepsilon)$  est alors nulle ou très sensiblement positive dans le cas d'une pré-déformation de 5%. Dans un second temps, nous avons comparé l'allure du creux de sensibilité en fonction de la teneur en hydrogène sur des éprouvettes ayant subi une pré-déformation identique. L'évolution de la sensibilité mesurée à 5% est illustrée sur la figure II-14 b). Il ressort de cette courbe que, pour des teneurs en hydrogène de 1500 et 1900 ppm atomique, la teneur en hydrogène n'a pas d'influence sur le domaine d'existence du vieillissement dynamique. Le creux de sensibilité est alors situé sur la frontière du domaine d'apparition des instabilités PLC défini sur la figure II-3. Dans le cas de cet alliage, le choix optimal de la température, pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ , est de  $-100^\circ\text{C}$ . Dans ces conditions, les essais de vieillissement statique sont réalisés juste en deçà du domaine d'apparition des instabilités.

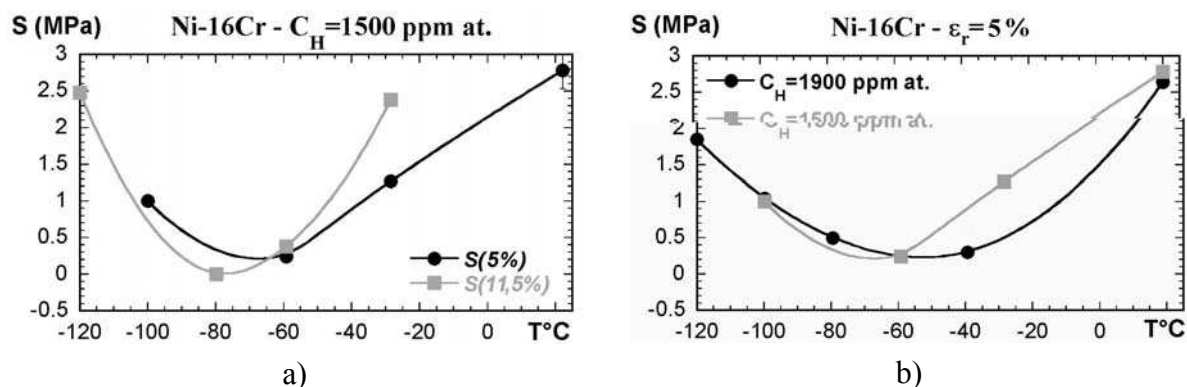


figure II-14. Evolution de la sensibilité  $S(\epsilon)$  de l'alliage Ni-16Cr en fonction de la température pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  en fonction de :

- la déformation plastique (5 et 11,5%) de mesure de  $S(\epsilon)$  pour une concentration en hydrogène de 1500 ppm atomique,
- la teneur en hydrogène ( $C_H = 1500$  et 1900 ppm atomique) pour une déformation plastique de 5%.

Dans le cas du nickel nous avons effectué des mesures de sensibilité pré-déformation de 5% et nous observons que le creux de sensibilité présente une évolution comparable à celle observée dans le cas de l'alliage comme en témoigne la figure II-15 a). En revanche, il est nettement plus marqué et décalé vers le domaine des basses températures. Ainsi au creux de sensibilité, pour une température de l'ordre de  $-80^\circ\text{C}$ , la sensibilité est alors nettement négative. La figure II-15 b) représente la courbe contrainte-déformation observée lors d'un essai de traction réalisé à  $-80^\circ\text{C}$ . A cette température, la sensibilité à 5% de déformation plastique est de  $-2,5 \text{ MPa}$  ce qui se traduit par la présence d'instabilités de type PLC. Ainsi, pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ , nous choisissons de nous placer à une température de  $-140^\circ\text{C}$ , ce qui nous assure de réaliser un essai de vieillissement dans un domaine de température et de vitesse de déformation où la sensibilité est positive.

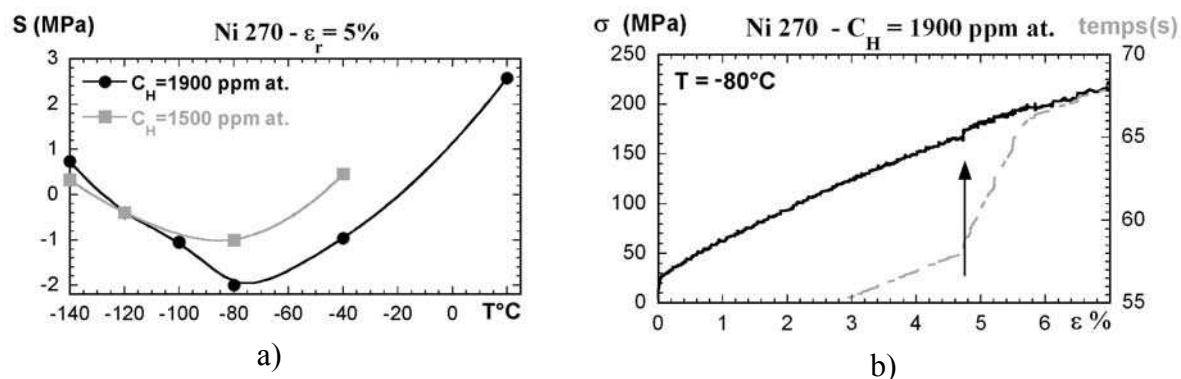


figure II-15. Détermination du domaine de vieillissement dynamique du nickel.

- Evolution de la sensibilité  $S(\varepsilon)$  mesurée à 5% de déformation plastique du nickel 270 chargé en hydrogène ( $C_H = 1500$  et  $1900$  ppm atomique) en fonction de la température pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ .
- Mesure de la sensibilité à 5% pour du nickel contenant  $1900$  ppm atomique. Pour un saut de vitesse entre  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  et  $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  à  $-80^\circ\text{C}$ ,  $S(\varepsilon) = -2,5 \text{ MPa}$ .

### II.2.3.2 Effet du transport de l'hydrogène par les dislocations sur la ductilité du Ni-16Cr

Lors de la détermination du domaine de vieillissement dynamique, nous avons balayé un large spectre de températures, depuis l'ambiante jusqu'aux températures cryogéniques. Il ressort de cette étude que, dans le cas de l'alliage binaire Ni-16Cr, le creux de sensibilité  $S(\varepsilon)$  se situe aux alentours de  $-70^\circ\text{C}$  pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Ainsi, à la température ambiante, les dislocations sont en permanence ancrées par leur nuage d'hydrogène et, en revanche, elles ne le sont jamais à des températures de l'ordre de  $-100^\circ\text{C}$ .

A la température ambiante, la présence de l'hydrogène se manifeste sur les courbes de traction par une diminution notable de l'allongement à rupture ainsi que par une baisse sensible du taux d'écrouissage comme en témoigne la figure II-16 a). L'étude des effets de l'hydrogène sur la courbe contrainte-déformation à la température ambiante fait l'objet du paragraphe IV.2.2. En revanche, en deçà du creux de sensibilité, il apparaît sur la figure II-16 b) qu'il n'y a aucune différence entre les courbes contrainte-déformation des matériaux chargé ou non.

Si l'on observe les effets de la température sur l'allongement à rupture de l'alliage, il apparaît que les effets fragilisants de l'hydrogène sont corrélés aux interactions dynamiques entre soluté et dislocations. Sur la figure II-17 sont superposées les évolutions de la sensibilité  $S(\varepsilon)$ , mesurée à 11,5%, et de l'allongement à rupture de l'alliage contenant une concentration de  $1500$  ppm atomique en fonction de la température. Il ressort alors que les effets fragilisants de l'hydrogène très marqués dans un domaine de température compris entre  $-40^\circ\text{C}$  et l'ambiante disparaissent dès lors que les essais sont réalisés à des températures inférieures à celle du creux de sensibilité. Ainsi, comme le montrent les figure II-16 a) et figure II-17, pour

des températures supérieures à  $-40^{\circ}\text{C}$  la déformation à la rupture des éprouvettes hydrogénées est trois fois plus faible que pour les éprouvettes non chargées (11% contre 33%). En revanche, en deçà du creux de sensibilité, pour des températures inférieures où égales à  $-100^{\circ}\text{C}$ , les effets de l'hydrogène ne se font alors plus sentir sur les courbes contrainte-déformation, l'allongement à rupture est alors de l'ordre de 40%.

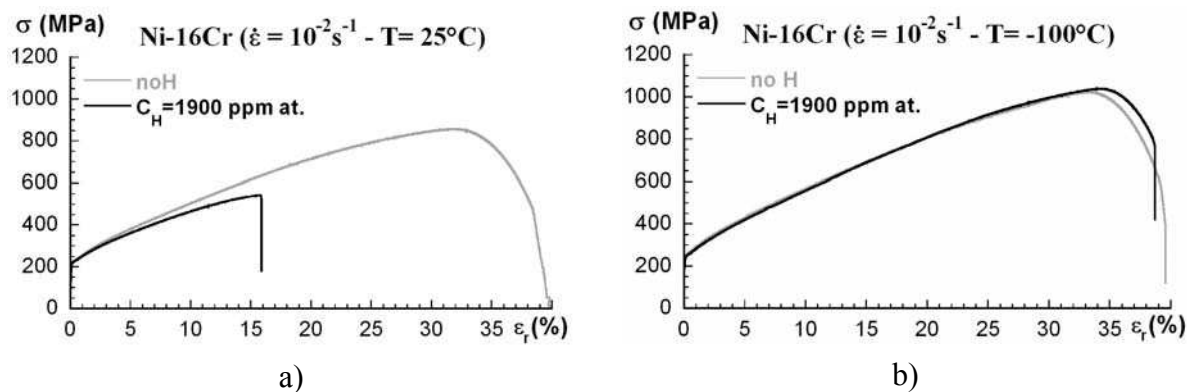


figure II-16. Courbes contrainte vraie-déformation vraie de l'alliage binaire Ni-16Cr non chargé et chargé en hydrogène ( $C_H = 1900 \text{ ppm atomique}$ ) pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  pour deux températures : a)  $T = 25^{\circ}\text{C}$  et b)  $T = -100^{\circ}\text{C}$ .

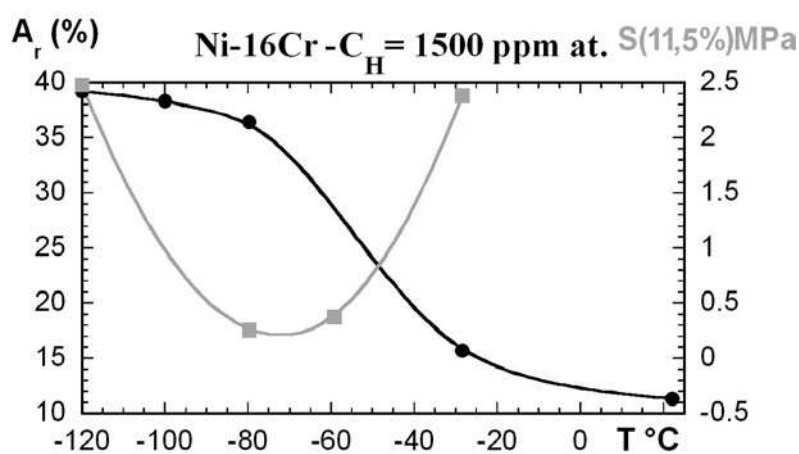


figure II-17. Variation de l'allongement à rupture et de la sensibilité  $S(\epsilon)$  mesurée à 11,5% de l'alliage Ni-16Cr contenant 1500 ppm atomique d'hydrogène en fonction de la température pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ .

Les observations au MEB des faciès de rupture après traction à l'ambiante et à une température de  $-120^{\circ}\text{C}$  sont reproduites sur la figure II-18. Il apparaît sur le cliché reproduit figure II-18 a) qu'en deçà du creux de sensibilité la rupture est parfaitement ductile alors qu'à la température ambiante la rupture est fragile et présente un caractère intergranulaire comme en témoigne la figure II-18 c).

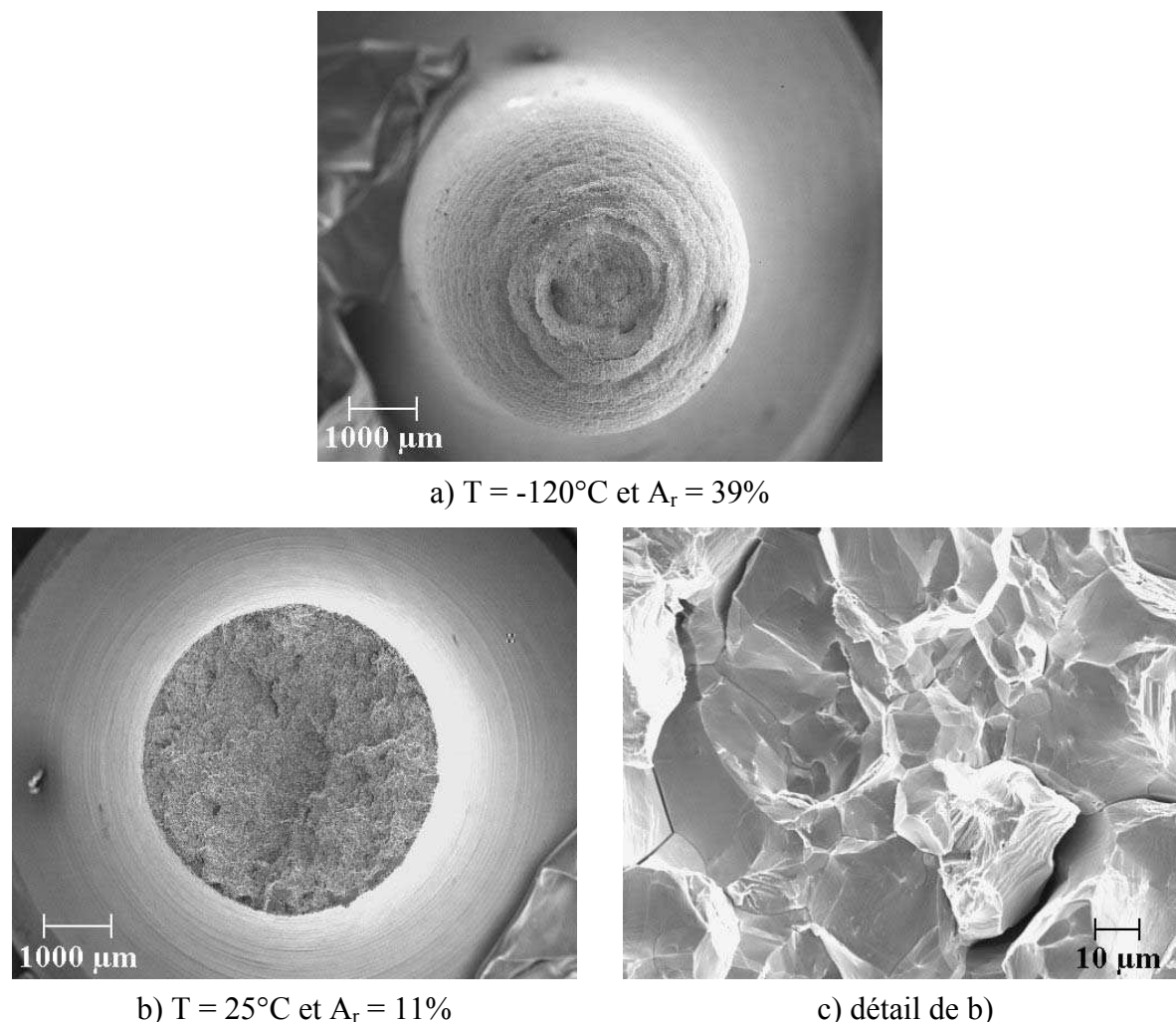


figure II-18. Observation au MEB des faciès de rupture du Ni-16Cr contenant une concentration de 1500 ppm atomique d'hydrogène en fonction de la température d'essai pour une même vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ .

- a) Pour une traction à  $-120^\circ\text{C}$ , l'allongement à rupture est de l'ordre de 40% et la rupture est ductile.
- b) et c) Essai à la température ambiante, la rupture est fragile et l'allongement est alors inférieur à 15%. L'image c) correspond à un agrandissement du faciès de rupture b) qui illustre le caractère intergranulaire fragile de la rupture.

L'influence de la température sur le caractère de la rupture du Ni-16Cr trouve son interprétation dans la nature des interactions dynamiques entre les dislocations et les atomes d'hydrogène. En deçà du creux de sensibilité ( $T < -100^\circ\text{C}$ ), les atomes de soluté ont une mobilité telle qu'ils ne peuvent ancrer dynamiquement les dislocations mobiles, tout se passe alors comme si les dislocations se déplaçaient dans une solution solide de composition Ni-16Cr-0,003H. A « haute » température, la mobilité des atomes d'hydrogène est suffisante

pour ancrer de façon continue les dislocations, celles-ci traînent donc en permanence leur atmosphère de Cottrell. Nous attribuons cet effet fragilisant au transport de l'hydrogène par les dislocations mobiles jusqu'aux joints de grains où il renforce les effets fragilisants d'éléments tels que le soufre et le phosphore. Ces éléments, présents en faible quantité comme en atteste le tableau II-2 et remis en solution par le recuit d'homogénéisation à 800°C, ont en effet pu ségréger aux joints de grains lors du séjour de 48 heures dans l'enceinte de chargement à 350°C ou 450°C. Ces résultats sont à mettre en parallèle avec ceux obtenus par Chêne et Brass [23] dans le cas de l'alliage 600 hydrogéné. Ainsi, pour des vitesses de déformation de l'ordre de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ , l'hydrogène favorise la fragilité intergranulaire dans un domaine de température compris entre 220 K et 360 K. En deçà, l'hydrogène n'affecte pas l'allongement à rupture de l'alliage 600.

### II.2.3.3 Analyse des essais de vieillissement statique

Nous avons montré dans le paragraphe II.1.2.2, grâce au « dislocation model », qu'il est possible de déterminer la contrainte maximale d'épinglage à partir de la mesure du pic de vieillissement statique à saturation. Or, ce pic de vieillissement statique n'est observable que dans un domaine de température et de vitesse de déformation où les atomes de soluté ne peuvent piéger dynamiquement les dislocations. Nous avons donc caractérisé ce domaine par des mesures de sensibilité  $S(\epsilon)$ . Il est ressorti de cette étude présentée au paragraphe II.2.3.1 que, pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ , les mesures doivent être effectuées à -100°C pour l'alliage Ni-16Cr et -140°C dans le cas du nickel. Cet aspect important explique les résultats obtenus par Abraham et Alstetter [24]. Ceux-ci n'observent aucune manifestation significative de vieillissement statique à la température ambiante sur un acier austénitique AISI 310s hydrogéné.

Les mesures du pic de vieillissement  $\Delta\sigma$  sont réalisées suivant la démarche décrite dans le paragraphe II.2.2.2 sur les deux matériaux considérés et pour les deux types de chargement définis dans le tableau II-3. Dans le cas de l'alliage, pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  et une température de -100°C, la sensibilité à la vitesse est de 1 MPa comme le montre la figure II-14 a). L'évolution du pic de vieillissement en fonction du temps de maintien est illustrée sur la figure II-19 pour les deux lots d'éprouvettes chargées en hydrogène ( $C_H = 1500 \text{ ppm}$  atomique et  $1900 \text{ ppm}$  atomique). Quelle que soit la pré-déformation et la teneur en hydrogène, l'évolution du pic de vieillissement se fait en deux temps avant d'atteindre une valeur à saturation. Pour des temps de maintien faibles, la croissance de  $\Delta\sigma$  est lente, puis elle augmente significativement à partir de temps de maintien de l'ordre de 750 s. Enfin, l'augmentation de la valeur du pic de vieillissement présente une inflexion pour des temps supérieurs à  $10^4 \text{ s}$  et atteint sa valeur à saturation. Il apparaît aussi que, pour un temps de maintien donné, le pic de vieillissement est une fonction sensiblement



croissante de la déformation plastique précédant l'essai de vieillissement comme l'avaient remarqué Combette et Grilhé [13]. En revanche, la pré-déformation n'a pas d'influence sur le temps de maintien requis pour atteindre la saturation, ni sur la valeur saturée de  $\Delta\sigma$ . Il apparaît que le comportement du pic de vieillissement statique en fonction du temps de maintien (courbe en S) est conforme à celui prédit par les simulations basées sur le « dislocation model » (figure II-8).

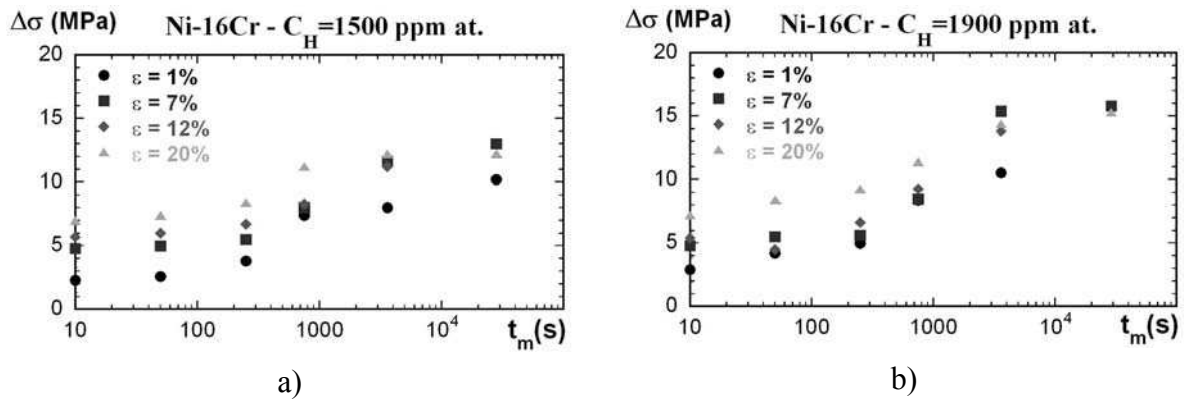


figure II-19. Evolution expérimentale du pic de vieillissement  $\Delta\sigma$ , mesuré à  $-100^\circ\text{C}$  pour l'alliage binaire Ni-16Cr, en fonction du temps de vieillissement mesuré à des pré-déformations de 1%, 7%, 12% et 20% pour a) une teneur en hydrogène de 1500 ppm atomique et b) 1900 ppm atomique.

La figure II-20 représente l'influence du temps de maintien sur le pic de vieillissement mesuré après une déformation nominale de 7% pour les deux concentrations en hydrogène étudiées. Dans les deux cas, il apparaît que la teneur en hydrogène n'affecte pas ou peu l'évolution de  $\Delta\sigma$  pour les faibles temps de maintien. En revanche, la concentration en hydrogène influe sur la valeur à saturation du pic de vieillissement, et ce quelle que soit la valeur de la pré-déformation. Ainsi pour une concentration en hydrogène de 1500 ppm atomique la valeur de  $\Delta\sigma$  à saturation est environ de 13 MPa alors qu'elle vaut aux alentours de 16 MPa pour une teneur de 1900 ppm atomique.

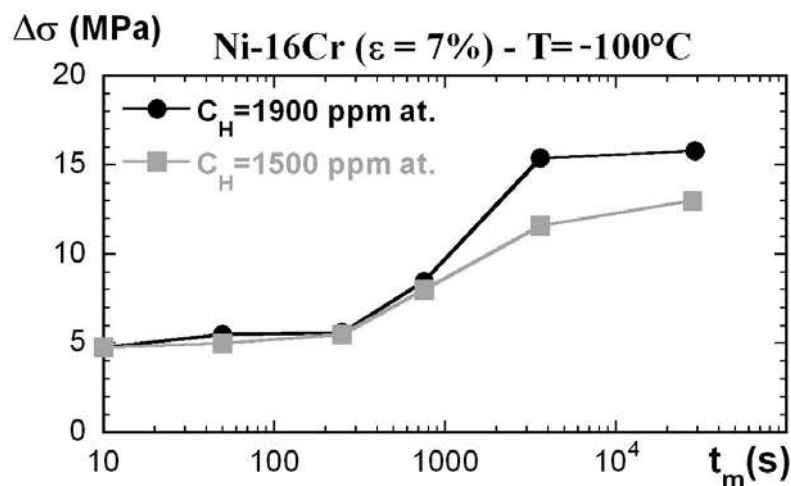


figure II-20. Evolution expérimentale du pic de vieillissement  $\Delta\sigma$  de l'alliage binaire Ni-16Cr, mesuré après une pré-déformation de 7% à  $-100^\circ\text{C}$ , en fonction du temps de vieillissement pour des teneurs en hydrogène de 1500 et 1900 ppm atomique.

Dans le cas du nickel, les essais de vieillissement statique sont réalisés, pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ , à une température de  $-140^\circ\text{C}$ , ce qui correspond également à une valeur de la sensibilité  $S(\epsilon)$  de 1 MPa (figure II-15). Les mesures du pic de sensibilité sont réalisées à 7 et 12%, les valeurs à 20% ne pouvant être atteintes du fait des problèmes de fragilité intergranulaire rencontrés. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure II-21. Le pic de vieillissement n'atteint pas la saturation après un maintien supérieur à 8 heures à  $-140^\circ\text{C}$ . Cependant, l'évolution de  $\Delta\sigma$  présente un profil comparable à celui observé dans le cas de l'alliage, à savoir une croissance modérée pour les faibles temps de maintien suivie d'une augmentation de la valeur du pic pour des temps supérieurs à 1000 s. En outre, pour des maintiens supérieurs à  $10^4$  s les courbes, quelle que soit la teneur en hydrogène, présentent une inflexion ce qui semble indiquer la proximité de la saturation. Dans la mesure où l'échelle de temps considérée est logarithmique, nous estimons que le temps de maintien requis pour atteindre la saturation est de l'ordre de  $10^5$  s, ce qui n'a pas été possible lors de cette étude. La figure II-21 permet de comparer l'allure de l'évolution de  $\Delta\sigma$  pour les deux teneurs en hydrogène étudiées. Il en ressort que l'écart entre les pics à temps de maintien égal se fait sentir pour des temps de maintien élevés, c'est à dire dès lors que la croissance de  $\Delta\sigma$  est importante. Plus la concentration en hydrogène est importante, plus la valeur du pic est élevée. Nous estimons que les valeurs à saturation seront sensiblement plus élevées dans le cas du nickel que pour l'alliage. Nous pouvons aussi noter que le niveau du pic de vieillissement est sensiblement plus important pour les temps faibles dans le cas de l'alliage que pour le nickel 270. En effet, pour un temps de maintien de 10 s, il vaut 5 MPa dans le cas du Ni-16Cr, contre 2 MPa pour le nickel.

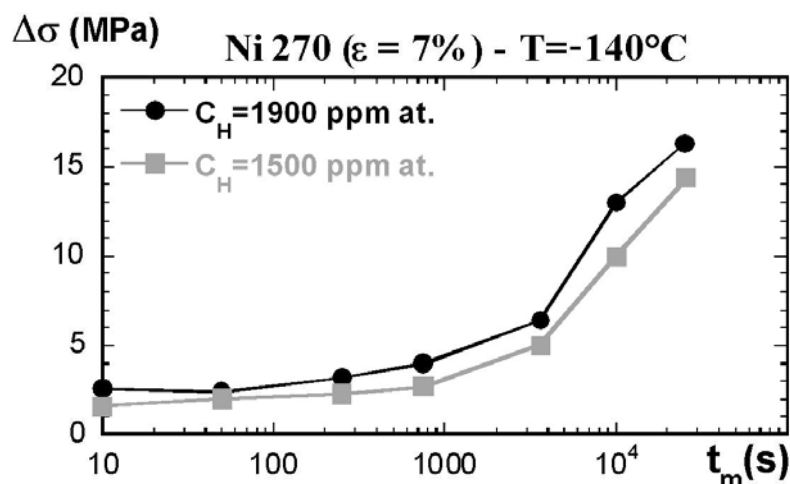


figure II-21. Evolution expérimentale du pic de vieillissement  $\Delta\sigma$  mesuré après une pré-déformation de 7% à  $-140^\circ\text{C}$  en fonction du temps de vieillissement pour du nickel 270 chargé en hydrogène à 1500 ppm atomique et 1900 ppm atomique.

Il ressort de cette étude que la valeur du pic de vieillissement à saturation est une fonction croissante de la teneur en hydrogène. Ce résultat est à mettre en parallèle avec ceux obtenus par De *et al.* [25] sur des aciers à durcissement structural à très bas carbone. En effet, pour des concentrations en carbone de 6 et 9 ppm massique, ils observent une variation significative de la valeur de  $\Delta\sigma$  à saturation comme le montre la figure II-22. Or, il ressort des calculs présentés dans le paragraphe II.1.2 synthétisés sur la figure II-8, que la valeur du pic de vieillissement à saturation correspond à la contrainte maximale d'épinglage  $f_0$ . La dépendance de la valeur à saturation de  $\Delta\sigma$  vis à vis de la teneur en soluté implique alors que la contrainte maximale d'épinglage est-elle aussi directement fonction de la concentration.

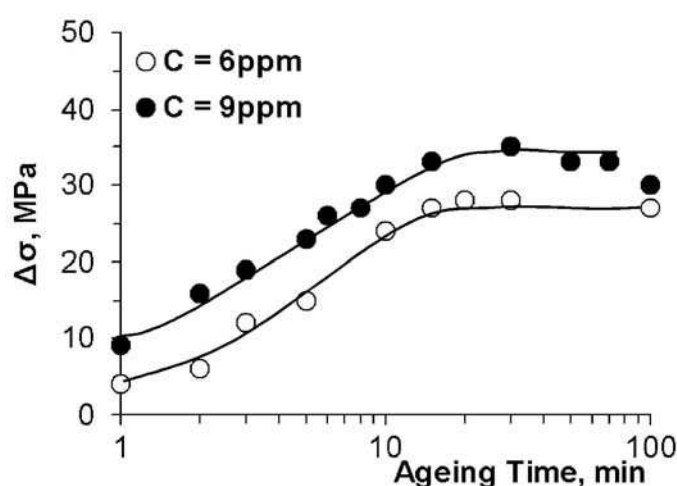


figure II-22. Evolution du pic de vieillissement  $\Delta\sigma$  mesuré après une pré-déformation de 5% à  $100^\circ\text{C}$  en fonction du temps de vieillissement dans le cas d'un acier à durcissement structural pour des teneurs en carbone de 6 et 9 ppm massique. D'après De *et al.* [25].

## **Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons utilisé les effets de vieillissement comme marqueur macroscopique des interactions hydrogène-dislocations dans du nickel et dans un alliage binaire Ni-16Cr. Notre objectif était de mesurer quantitativement la force maximale d'épinglage des impuretés sur les dislocations qui correspond à la valeur à saturation du pic de vieillissement statique,  $\Delta\sigma$ . Or, la seule étude quantitative disponible sur le comportement du nickel hydrogéné, menée par Combette et Grihlé [13], est centrée sur l'étude du régime transitoire de  $\Delta\sigma$  (la dépendance en  $t^{2/3}$ ) et n'explore pas la saturation. Afin de déterminer la valeur du pic de vieillissement statique à saturation, nous avons utilisé des matériaux modèles de pureté contrôlée, du nickel 270 ainsi qu'un alliage binaire contenant 16% massique de chrome. La technique d'hydrogénation employée, en autoclave, nous garantit un mode de chargement optimal. Les essais ont été effectués dans une enceinte climatique assurant un parfait maintien de la température, y compris pour de longs maintiens à basse température (jusqu'à 10 heures à  $-140^\circ\text{C}$ ). L'optimisation des conditions de préparation des éprouvettes et des conditions d'essai nous a conduit à utiliser des moyens conséquents qui peuvent se mesurer en dizaines d'éprouvettes chargées en hydrogène et tractionnées. Enfin, nous nous sommes appuyés sur une modélisation du vieillissement statique afin d'optimiser nos conditions expérimentales et d'interpréter quantitativement nos résultats.

Nous avons montré que le pic de vieillissement statique présente une évolution en « S » en fonction du temps de maintien  $t_m$ . Ce comportement qui aboutit à une saturation du pic de vieillissement statique n'est pas spécifique au couple nickel-hydrogène et est correctement prédit par le « dislocation model ». Pour des concentrations supérieures à 1500 ppm atomique et à des températures inférieures à 200 K, nous avons mis en évidence que la valeur à saturation de  $\Delta\sigma$  croît avec la teneur en hydrogène. Or, Chêne et Brass [23] ont montré que, dans ce domaine de températures, les pièges profonds sont saturés en hydrogène. Cette expérience illustre ainsi le piégeage réversible de l'hydrogène dans le champ élastique des dislocations. Il ressort de cette étude que la valeur à saturation du pic de vieillissement est d'environ 15 MPa, les effets étant sensiblement plus importants dans le cas du nickel. En nous basant sur la durée des transitoires à la recharge, la modélisation nous permet d'estimer que cette valeur à saturation correspond à 90% de la valeur de  $f_0$ . En conséquence, le traînage visqueux des atmosphères de Cottrell, correspond à une contribution constante positive à la contrainte d'écoulement, de l'ordre de 15-20 MPa dans du nickel et du Ni-16Cr pour des teneurs en hydrogène de 1500-1900 ppm atomique, lors d'un essai à la température ambiante et pour des vitesses de déformations ordinaires. Enfin, nous avons montré que même quand un phénomène potentiellement à l'origine d'une Fragilisation Assistée par l'Hydrogène, FAH, était présent (la ségrégation du soufre aux joints de grains dans notre cas), la seule présence

d'hydrogène dans le réseau ne suffisait pas à provoquer cette FAH. Nous avons ainsi mis en évidence que le transport de l'hydrogène par les dislocations est nécessaire à l'apparition de cette fragilité. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par Lecoester *et al.* [26] sur un alliage 600. Après avoir étudié les effets de vieillissement, nous nous focaliserons, dans le chapitre suivant, sur les effets de l'hydrogène sur les mécanismes de la plasticité.

## **Bibliographie - II**

- [1] A. Portevin et F. Le Chatelier, "Sur un phénomène observé lors de l'essai de traction d'alliages en cours de transformation", Comptes Rendus des Séances de l'Académie des Sciences (1923), 176, p. 507-510.
- [2] A. H. Cottrell et B. A. Bilby, "Dislocation theory of yielding and strain ageing of Iron", Proceedings of the Royal Society A (1949), 62, p. 49-62.
- [3] Y. Estrin et L. P. Kubin, "Local strain hardening and nonuniformity of plastic deformation", Acta Metallurgica (1986), 34, p. 2455-2464.
- [4] L. P. Kubin et Y. Estrin, "Evolution of dislocation densities and the critical conditions for the Portevin Le Chatelier effect", Acta Metallurgica et Materialia (1990), 38, p. 697-708.
- [5] A. H. Cottrell, "A note on the Portevin-Le Chatelier effect", Philosophical Magazine A (1953), 44, p. 829-832.
- [6] J. Friedel, Dislocations - Chapter XVI. Formation and motion of impurity clouds, Pergamon Press (1964).
- [7] A. W. Sleeswyk, "Slow strain-hardening of ingot iron", Acta Metallurgica (1958), 6, p. 598-603.
- [8] P. Penning, "Mathematics of the Portevin-Le Chatelier effect", Acta Metallurgica (1972), 20, p. 1169-1175.
- [9] R. A. Mulford et U. F. Kocks, "New observations of the mechanisms of dynamic strain ageing and of jerky flow", Acta Metallurgica (1979), 27, p. 1125-1134.
- [10] P. G. McCormick, "A model for the Portevin-Le Chatelier effect in substitutional alloys", Acta Metallurgica (1972), 20, p. 351-354.
- [11] A. Van Den Beukel et U. F. Kocks, "The strain dependence of static and dynamic strain-aging", Acta Metallurgica (1982), 30, p. 1027-1032.
- [12] N. Louat, "On the theory of the Portevin-Le Chatelier effect", Scripta Metallurgica (1981), 15, p. 1167-1170.
- [13] P. Combette et J. Grilhé, "Effet Portevin Le Chatelier et discontinuité à la limite élastique dans le nickel hydrogéné", Mémoires Scientifiques de la Revue de Métallurgie (1970), LXVII, p. 491-505.
- [14] L. P. Kubin, Y. Estrin et C. Perrier, "On static strain ageing", Acta Metallurgica et Materialia (1992), 40, p. 1037-1044.
- [15] P. G. McCormick, "Theory of flow localisation due to dynamic strain ageing", Acta Metallurgica (1988), 36, p. 3061-3067.
- [16] T. Boniszewski et G. C. Smith, "The influence of hydrogen on the plastic deformation ductility and fracture of nickel in tension", Acta Metallurgica (1963), 11, p. 165-178.
- [17] A. H. Windle et G. C. Smith, "The effect of hydrogen on the plastic deformation of nickel single cristal", Metal Science Journal (1968), 2, p. 187-191.

- [18] R. M. Latanision et R. W. Staehle, "The effect of continuous hydrogenation on the deformation of nickel single crystals", *Scripta Metallurgica* (1968), 2, p. 667-672.
- [19] J. S. Blakemore, "The Portevin-Le Chatelier effect in hydrogenated nickel alloys", *Metallurgical Transactions* (1970), 1, p. 151-156.
- [20] F. Foct, O. De Bouvier et T. Magnin, "Stress corrosion cracking mechanisms of alloy 600 polycrystals and single crystals in primary water - Influence of hydrogen", *Metallurgical and Materials transactions A* (2000), 31A, p. 2025-2036.
- [21] J. S. Blakemore, "The Portevin-Le Chatelier effect in hydrogenated nickel", *Metallurgical Transactions* (1970), 1, p. 145-149.
- [22] P. Combette et P. Azou, "Diffusion de l'hydrogène dans le nickel", *Mémoires Scientifiques de la Revue de Métallurgie* (1970), LXVII, p. 17-33.
- [23] J. Chêne et A. M. Brass, "Consequences of hydrogen-deformation interactions on the environmental degradation of iron and nickel base alloys", dans *EDEM*, Bordeaux, France (2003), édité par J. M. Olive et A. Zielinski, European Federation of Corrosion.
- [24] D. P. Abraham et C. J. Altstetter, "Hydrogen-enhanced localization of plasticity in an austenitic stainless steel", *Metallurgical and Materials transactions A* (1995), 26A, p. 2859-2871.
- [25] A. K. De, S. Vandeputte et B. C. De Cooman, "Static strain aging behaviour of ultra low carbon bake hardening steel", *Scripta Materialia* (1999), 41, p. 831-837.
- [26] F. Lecoester, J. Chêne et D. Noel, "Hydrogen embrittlement of the Ni-base alloy 600 correlated with hydrogen transport by dislocations", *Materials Science and Engineering* (1999), 262, p. 173-183.

**Chapitre III. :**  
**MODELISATION DES EFFETS DE L'HYDROGENE SUR**  
**LES MECANISMES DE PLASTICITE**





## **Introduction**

Au premier chapitre, nous avons rappelé que les dislocations sont des sites de piégeage très spécifiques dans la mesure où elles participent au transport de l'hydrogène. En outre, l'étude des mécanismes de vieillissement, présentée au chapitre II, nous confirme que, au cours d'un essai de traction à la température ambiante et pour des vitesses de déformation ordinaires, les dislocations sont en permanence épinglées par leur atmosphère de soluté. De nombreuses observations expérimentales, présentées au premier chapitre, mettent en évidence le fait que l'hydrogène en solution modifie les interactions de paires entre dislocations. Cet effet se traduit notamment par une densification des empilements de dislocations ainsi qu'une planéité accrue du glissement. Ces effets, ainsi que l'augmentation de la « mobilité » des dislocations sont généralement interprétés comme étant dus à un écrantage des interactions entre dislocations assisté par l'hydrogène.

Sofronis et Birnbaum [1] ont modélisé les interactions hydrogène-dislocations par une méthode de calcul de type « mécanique des milieux continus ». Cette approche permet de reproduire les mécanismes d'interactions hydrogène-dislocations et en particulier l'effet d'écrantage des interactions de paires entre dislocations coin. Chateau *et al.* [2] ont également développé une simulation à l'échelle des interactions élastiques entre défauts visant à reproduire les effets de l'hydrogène sur les mécanismes d'interactions entre dislocations. L'originalité de cette approche est de reposer sur une discrétisation de la distribution d'hydrogène. Son principal atout est de proposer une expression analytique du taux d'écrantage des interactions de paires entre les composantes coin des dislocations. Dans un premier paragraphe, nous examinons la nature des interactions hydrogène-dislocation coin et nous analysons l'effet d'écrantage des interactions de paires et en particulier la définition de l'indice d'écrantage introduit par Chateau *et al.*. Le caractère général de cette expression permet son utilisation dans l'évaluation du rôle de l'hydrogène sur les mécanismes mettant en jeu des interactions élastiques entre composantes coin. En conséquence, il devient possible de « revisiter » les résultats classiques de la plasticité tels que décrits dans le Friedel [3] en y introduisant ce terme d'écrantage. Dans cette optique, nous avons tout d'abord étudié analytiquement l'influence de cet effet d'écrantage sur l'énergie de ligne ainsi que sur la tension de ligne des dislocations.

En outre, le modèle de tension de ligne est particulièrement adapté au calcul des mécanismes élémentaires de la plasticité tels que l'activation d'une source de Frank-Read, le calcul de la force des jonctions. Dans la seconde partie de ce chapitre, nous nous sommes donc appuyés sur le modèle classique de tension de ligne de De Wit et Koehler [4] afin d'analyser l'influence des effets d'écrantage induits par l'hydrogène sur les mécanismes de

réactions entre dislocations. De plus, en dépit de simplifications importantes, l'écart entre ce modèle classique et des modèles plus récents et plus complexes est généralement faible. L'utilisation du modèle de tension de ligne présente, également, l'intérêt de permettre une évaluation analytique de l'influence des effets élastiques de l'hydrogène sur différents mécanismes participant à la déformation plastique des cristaux.

### **III.1 Influence sur les propriétés individuelles des dislocations**

L'occupation, à la température ambiante, des sites octaédriques dans les structures CFC par l'hydrogène provoque une dilatation isotrope du réseau. En outre, comme nous l'avons rappelé dans le paragraphe I.1.1.1., un certain nombre de propriétés de l'hydrogène (forte mobilité, faible solubilité et grand volume molaire partiel) sont à l'origine de l'influence des contraintes hydrostatiques sur sa diffusion ainsi que de la relaxation de ces mêmes contraintes par l'hydrogène. En nous appuyant sur les travaux réalisés sur les interactions soluté-dislocations par Larché et Cahn [5], Sofronis et Birnbaum [1] puis par Chateau *et al.* [2], nous analysons, dans cette partie, l'influence de l'hydrogène sur les propriétés individuelles des dislocations et, en particulier, sur leur énergie de ligne et leur tension de ligne.

#### **III.1.1 Relaxation du champ de contrainte autour d'une dislocation coin**

L'hydrogène en solution solide interagit avec les défauts microstructuraux par effet de dilatation isotrope du réseau cristallin. Larché et Cahn [5] ont étudié les interactions entre la teneur en soluté et la contrainte par linéarisation des équations d'équilibre. Cette approche, affinée par Sofronis [6], permet de déterminer le champ de déformation induit par l'introduction d'atomes en solution solide interstitielle à l'état stationnaire. A partir de ces résultats, il est alors possible d'évaluer l'influence d'une solution solide d'hydrogène sur le champ de contrainte autour d'une dislocation coin dans le cas d'un cristal isotrope.

##### **III.1.1.1 Théorie élastique linéaire de l'équilibre entre solution solide interstitielle et métal**

L'introduction d'atomes en solution solide interstitielle mobile dans un matériau non contraint se caractérise par un effet de distorsion du réseau. Cette distorsion du réseau s'exprime par un tenseur d'expansion associé à un atome d'interstitiel,  $\mathbf{H}$ . Soit  $C_0$  la concentration volumique uniforme de l'état de référence ( $\text{at.m}^{-3}$ ). En l'absence de contrainte appliquée, la déformation induite par l'introduction d'une concentration locale  $C$  de solution solide interstitielle,  $\epsilon^{ssi}$ , s'écrit :

$$\varepsilon_{ij}^{ssi} = H_{ij} (C - C_0). \quad (\text{III.1})$$

Sous l'action d'une contrainte locale  $\sigma$ , les composantes du tenseur des déformations sont données par :

$$\varepsilon_{ij} = \mathbf{K}_{ijkl} \sigma_{kl} + \mathbf{H}_{ij} (C - C_0) \quad (\text{III.2})$$

où  $\mathbf{K}$  est le tenseur de compliance pour une concentration nominale  $C_0$ . Le potentiel chimique  $\mu(\sigma_{ij}, T, C)$  correspond au travail isotherme requis pour apporter un atome depuis l'infini jusqu'à la matrice. Il s'écrit [5] :

$$\mu(\sigma_{ij}, T, C) = \mu_0 + kT \ln \left( \frac{C}{C_0} \right) - \mathbf{H}_{ij} \sigma_{ij} \quad (\text{III.3})$$

où  $\mu_0$  est le potentiel chimique de l'état initial,  $k$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température. Il ressort de cette expression que la présence de tensions hydrostatiques abaisse le potentiel chimique de l'hydrogène. Les gradients de potentiel chimique induisent un flux local d'hydrogène qui, pour de faibles concentrations, est décrit par la première loi de Fick :

$$\vec{J} = - \frac{D_H C}{kT} \vec{\nabla} \mu \quad (\text{III.4})$$

$D_H$  étant le coefficient de diffusion de l'hydrogène à la température  $T$  et  $R$  la constante des gaz parfaits. A partir des équations (III.3) et (III.4), la seconde loi de Fick s'écrit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = - \vec{\nabla} \cdot \vec{J} = D_H \cdot \nabla^2 C - \frac{D C_0}{kT} \nabla^2 (\mathbf{H}_{ij} \sigma_{ij}). \quad (\text{III.5})$$

A l'état stationnaire, la concentration d'équilibre peut être définie quand le flux (III.4) est nul c'est à dire pour un gradient de potentiel chimique nul [6]. En intégrant la condition de flux nul, on aboutit à une concentration  $C$  en équilibre avec la contrainte locale, soit :

$$C - C_0 = \frac{\mathbf{H}_{ij} \sigma_{ij}}{kT} C_0. \quad (\text{III.6})$$

La présence d'une solution solide interstitielle affecte alors le tenseur de compliance qui, en substituant (III.6) dans l'équation constitutive (III.2), s'écrit alors :

$$\mathbf{K}_{ijkl}^{ssi} = \mathbf{K}_{ijkl} + C_0 \frac{\mathbf{H}_{ij} \mathbf{H}_{kl}}{kT} \quad (\text{III.7})$$

$$\text{où } \varepsilon_{ij} = \mathbf{K}_{ijkl}^{ssi} \sigma_{kl} . \quad (\text{III.8})$$

### III.1.1.2 Interaction hydrogène-dislocation coin

La dilatation isotrope du réseau  $\Delta v$  induite par l'hydrogène dans un matériau non contraint est directement liée au volume molaire partiel d'hydrogène  $V^*$  par  $V^* = \Delta v N_{Av}$  où  $N_{Av}$  est le nombre d'Avogadro. Le tenseur de déformation induit par l'introduction d'une concentration locale  $C$  s'écrit :

$$\varepsilon_{ij}^H = \frac{\Delta v}{3} (C - C_0) \delta_{ij} \quad (\text{III.9})$$

où  $\delta_{ij}$  correspond au symbole de Kronecker. Il apparaît alors que ce tenseur de déformation est hydrostatique. Dans le cas d'une solution solide d'hydrogène, la comparaison entre les équations (III.2) et (III.9) permet de déterminer les composantes du tenseur d'expansion associé à un atome d'hydrogène,  $\mathbf{H}^H$  :

$$\mathbf{H}_{ij}^H = \frac{\Delta v}{3} \delta_{ij} . \quad (\text{III.10})$$

En introduisant cette expression dans la définition du potentiel chimique (III.3), il ressort que la présence de tensions hydrostatiques ( $\Delta v \sigma_{kk}/3$ ) abaisse le potentiel chimique de l'hydrogène. La première loi de Fick (III.4) s'écrit alors :

$$\vec{J} = -D_H \left[ \vec{\nabla} C + \frac{\Delta v}{kT} . C . \vec{\nabla} \frac{\sigma_{kk}}{3} \right] . \quad (\text{III.11})$$

Le flux d'hydrogène est donc non seulement gouverné par un gradient de concentration mais aussi par un gradient de contrainte hydrostatique. L'hydrogène va ainsi diffuser vers les zones en traction et y relaxer les contraintes.

A partir des équations (III.7) et (III.10), il est ainsi possible de déterminer les expressions des modules d'Young,  $E$ , de cisaillement,  $\mu$ , et du coefficient de Poisson,  $\nu$ , à l'état stationnaire (à flux nul) en fonction de leur valeur à composition fixée. Dans le cas d'un cristal isotrope, ces grandeurs sont alors données par les expressions suivantes :

$$\mu^H = \mu , \quad (\text{III.12})$$

$$E^H = \frac{E}{1 + \chi \eta^2 E}, \quad (III.13)$$

$$\nu^H = \frac{\nu - \chi \eta^2 E}{1 + \chi \eta^2 E}, \quad (III.14)$$

$$\text{avec } \chi = \frac{c V_M}{9RT}$$

$$\text{et } \eta = \frac{V^*}{V_M}.$$

où  $V_M$  est le volume molaire moyen du métal,  $R = kN_{Av}$  la constante des gaz parfaits et  $c$  est le rapport entre le nombre d'atomes d'hydrogène et le nombre d'atomes de métal, c'est à dire :  $c = \frac{n_H}{n_M} = \frac{C_0 V_M}{N_{Av}}$ . Il est à noter que, dans le cas des sites octaédriques d'un CFC, c'est également le taux d'occupation des sites. Les constantes élastiques (III.12), (III.13) et (III.14), déterminées à l'état stationnaire (lorsque le flux d'hydrogène est nul), s'expriment uniquement en fonction de la teneur en hydrogène,  $c$ .

Il est alors possible d'évaluer le champ de contrainte autour d'une dislocation coin en présence d'hydrogène. Suivant les notations introduites figure III-1, l'expression du tenseur des contraintes associé à une dislocation coin en présence d'hydrogène, en coordonnées cylindriques ( $e_r, e_\psi, e_z$ ), est alors donnée par :

$$\sigma_{rr}^H = \sigma_{\psi\psi}^H = -\frac{\mu b}{2\pi(1-\nu^H)} \frac{\sin \psi}{r} \quad (III.15)$$

$$\sigma_{r\psi}^H = \frac{\mu b}{2\pi(1-\nu^H)} \frac{\cos \psi}{r} \quad (III.16)$$

$$\sigma_{zz}^H = -\frac{\mu b \nu^H}{\pi(1-\nu^H)} \frac{\sin \psi}{r} \quad (III.17)$$

$$\sigma_{rz}^H = \sigma_{\psi z}^H = 0. \quad (III.18)$$

Afin d'isoler la contribution due à l'hydrogène, la composante radiale du tenseur (III.15) peut s'écrire comme suit :

$$\sigma_{rr}^H = -\frac{\mu b}{2\pi(1-\nu)} \left( 1 - \frac{\nu - \nu^H}{1 - \nu^H} \right) \frac{\sin \psi}{r}.$$

$$\text{avec } \frac{\nu - \nu^H}{1 - \nu^H} = \frac{1 + \nu}{2 \left( 1 + \frac{9(1-\nu)RV_M T}{EV^{*2} c} \right)}. \quad (III.19)$$

Il ressort de ce calcul que seules la teneur en hydrogène  $c$  et la température  $T$  influent sur l'amplitude des effets de l'hydrogène sur le champ de contrainte autour d'une dislocation. Les autres termes présents dans cette expression correspondent à des paramètres du matériau et ne sont pas altérés par l'hydrogène. Notre résultat est en accord avec celui de Sofronis [6], les expressions (III.15) et (III.16) correspondant aux cas limites, à savoir l'état stationnaire, des formules 83-85 [6] qui décrivent l'évolution temporelle des composantes du tenseur des contraintes autour d'une dislocation coin induite par la diffusion.

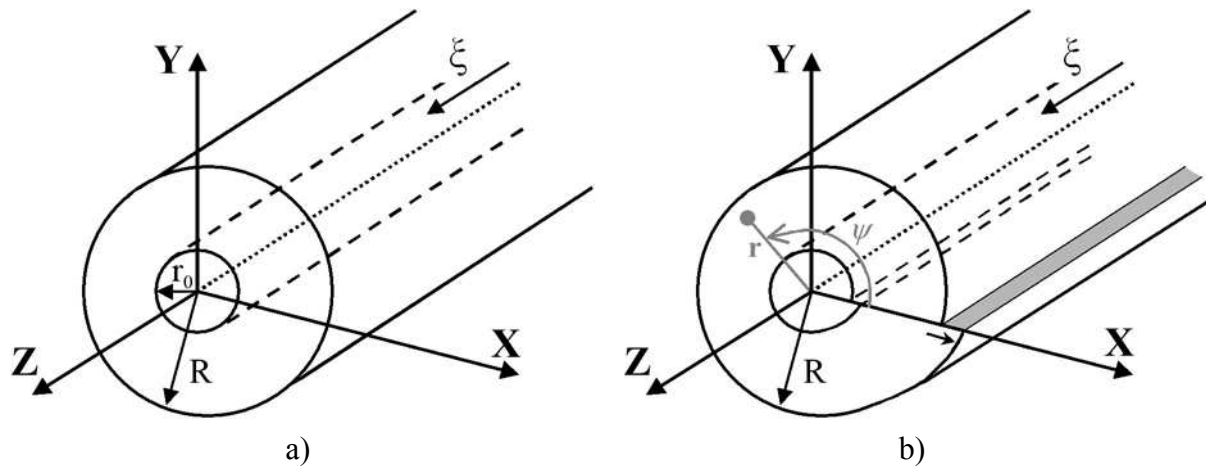


figure III-1. Schéma de création d'une dislocation coin. a) Etat initial sans dislocation, cylindre de cristal infiniment long de rayon  $R$ . b) Introduction d'une dislocation coin de rayon de cœur  $r_0$  et de vecteur de ligne  $\xi$  au centre de ce cylindre par le processus de « coupure-déplacement » de Volterra.

Connaissant le champ de contrainte autour d'une dislocation coin, il est alors possible d'évaluer l'effet de l'hydrogène sur le champ de contrainte hydrostatique à l'état stationnaire. Il ressort de la figure III-2 que l'hydrogène tend à relaxer la contrainte hydrostatique. Dans le paragraphe suivant nous reviendrons plus en détail sur l'influence des contraintes hydrostatiques sur la ségrégation de l'hydrogène.

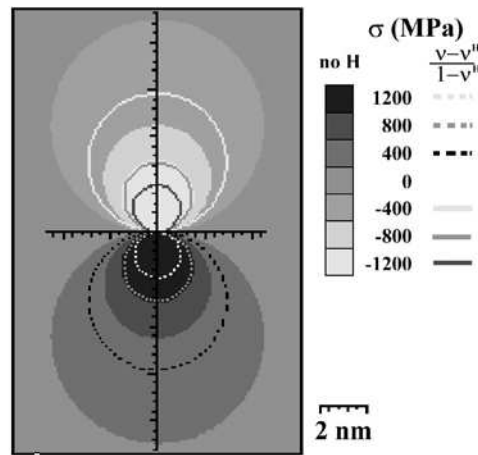


figure III-2. Effet de la teneur en hydrogène sur le champ de contrainte hydrostatique d'une dislocation coin à l'état stationnaire.

**En ségrégeant dans le champ hydrostatique des dislocations coin, l'hydrogène modifie leur champ de contrainte.**

### III.1.2 Ecrantage des interactions de paires

En vue d'évaluer l'influence de l'hydrogène sur la force d'interaction de paires, nous rappelons succinctement le principe et les résultats de la méthode de simulation développée par Chateau *et al.* [2]. Ce modèle s'appuie sur la première loi de Fick (III.2) ainsi que sur le fait qu'à un profil de concentration en hydrogène est associé un profil de contraintes hydrostatiques. La méthode de calcul utilisée repose sur la discrétisation de la distribution d'hydrogène. Le champ continu de concentration en hydrogène est transformé en une distribution discrète de lignes de dilatations (figure III-3). Cette technique présente l'avantage de pouvoir évaluer les interactions entre la distribution d'hydrogène et les dislocations en sommant les contributions entre défauts discrets.

Il est alors possible d'évaluer le profil de distribution de l'hydrogène autour d'une dislocation coin isolée dans un matériau contenant une concentration uniforme de soluté. Les résultats présentés figure III-4 correspondent au cas d'un monocristal de 316L ( $b = 2,55 \text{ \AA}$ ,  $\mu = 75 \text{ GPa}$ ,  $\nu = 0,2775$ ,  $V^* = 2 \text{ cm}^3/\text{mol}$ ,  $D = 5,3 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{s}$  à 390 K), pour une concentration uniforme de  $C_0 = 0,01$ . L'hydrogène ségrège dans le champ hydrostatique des dislocations coin. La concentration augmente en dessous du plan de glissement de la dislocation, provoquant une dilatation du réseau. Réciproquement, la diminution de la concentration dans les zones en compression induit un retrait du matériau. Cette répartition asymétrique de l'hydrogène de part et d'autre du plan de glissement relaxe les contraintes de cisaillement induites par la dislocation.



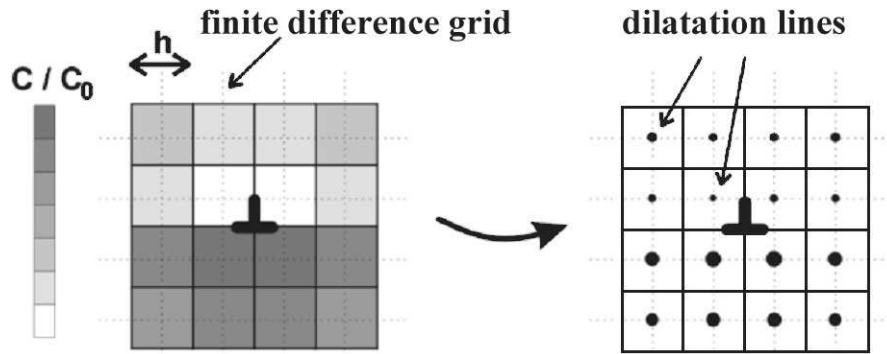


figure III-3. Représentation schématique de la discrétisation de la distribution en hydrogène autour d'une dislocation. Le profil continu de concentration est transformé en une distribution discrète de lignes de dilatations situées au centre de chaque boîte élémentaire de section carrée. Leur amplitude est proportionnelle à la concentration en hydrogène de chaque boîte. D'après Chateau et al. [2].

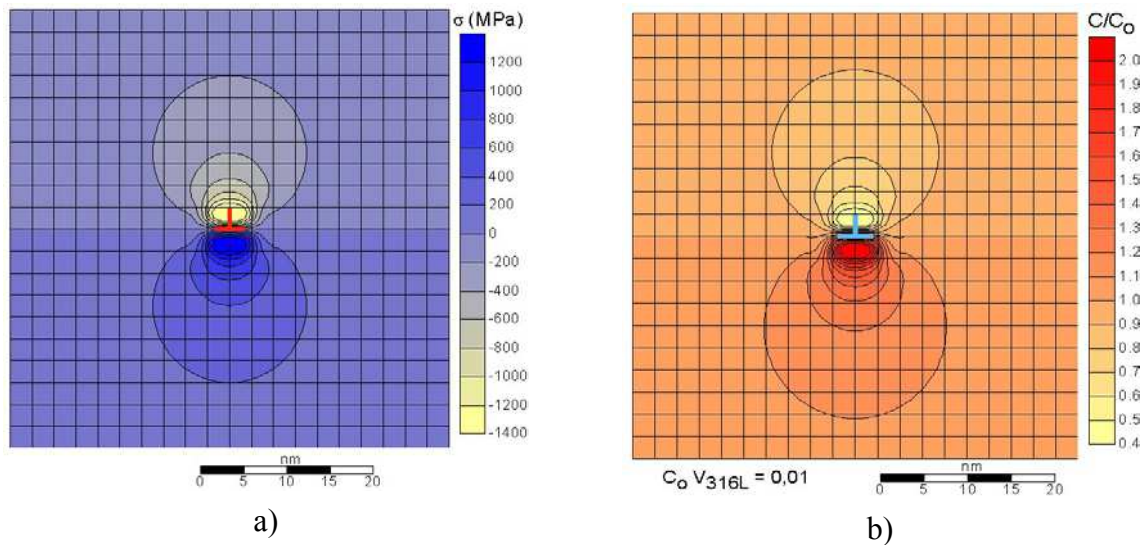


figure III-4. Ségrégation de l'hydrogène, à 390K, autour d'une dislocation coin dans le 316L. a) profil de contrainte hydrostatique, b) distribution de l'hydrogène à l'état stationnaire. D'après Chateau et al. [2].

Si une seconde dislocation, identique à la première, est introduite à proximité la première, celle-ci va subir une cission résolue somme de deux contributions : celle due à la première dislocation et celle associée au nuage d'hydrogène, de signe opposé. La figure III-5 illustre le fait que la contribution du nuage d'hydrogène à la cission résolue présente la même singularité que la contribution due aux dislocations seules mais de signe opposé et de plus faible amplitude. Ce résultat, déjà souligné par Sofronis [1], est à l'origine de l'écrantage des interactions de paires par l'hydrogène en solution.

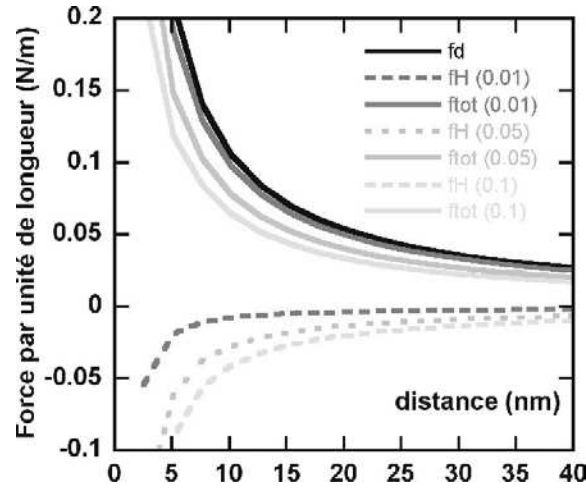


figure III-5. Force d'interaction entre deux dislocations coin en présence d'hydrogène en fonction de la distance de séparation. D'après Chateau et al. [2].

En conséquence, lorsqu'elle est normalisée par la force d'interaction de paire, cette diminution relative des interactions est indépendante de la distance de séparation. Chateau a alors montré, par un calcul aux dimensions et un ajustement numérique des résultats de simulations que l'expression générale pour l'écrantage relatif de la cisssion résolue entre les composantes coin de deux dislocations quelconques ou indice d'écrantage, noté  $S(T,c)$ , s'écrit :

$$S(T,c) = \frac{S_0}{1 + \beta \frac{T}{c}} \quad \text{avec } S_0 = 75\% \text{ et } \beta = \frac{9(1-\nu)RV_M}{2EV^{*2}} \quad (\text{III.20})$$

où  $T$  représente la température,  $c$  la concentration en hydrogène  $S_0$  la valeur maximale d'écrantage et  $V_M$  le volume molaire du métal. Le coefficient  $\beta$ , contenant donc tous les paramètres du matériau, vaut  $2,33 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  dans le cas du nickel et  $2,52 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  pour le 316L. Par ailleurs, Chateau a montré que la valeur du paramètre  $S_0$  est indépendante de la nature du matériau et est toujours égale à 75%.

La force par unité de longueur exercée par un tenseur des contraintes extérieures sur une dislocation de vecteur de Burgers  $\vec{b}$  et de vecteur de ligne  $\vec{\xi}$  est donnée par la relation de Peach-Koehler [7]. Il est alors possible de déterminer la force entre deux dislocations coin parallèles, le détail de ce calcul est donné dans l'Annexe I. A potentiel chimique fixé, la force d'interaction entre ces deux dislocations distantes de  $r$  vaut :

$$F_r^H = \frac{\mu b_1 b_2}{2\pi(1-\nu^H)r} = \frac{\mu b_1 b_2}{2\pi(1-\nu)r} \left( 1 - \frac{\nu - \nu^H}{1 - \nu^H} \right). \quad (\text{III.21})$$

Si l'on compare maintenant les expressions (III.19) et (III.20), il apparaît que seul le terme correspondant à la valeur maximale d'écrantage diffère. Or, la différence entre ces deux approches réside dans la prise en compte de la modification des constantes élastiques du matériau en présence d'hydrogène. Ainsi ce terme, en ne considérant que la relaxation du champ de contrainte hydrostatique des dislocations, vaut 75% alors que son expression est  $S_0 = \frac{1+\nu}{2}$  si l'on tient compte des effets de second ordre. Dans ce chapitre, les effets de l'hydrogène seront analysés par le biais de l'indice d'écrantage  $S(T,c)$  dont l'évolution à la température ambiante et en fonction de la teneur en hydrogène est présentée sur la figure III-7 dans le cas du nickel. Dans la suite les valeurs numériques évaluées pour les effets d'écrantage sont données par trois valeurs de  $S(T,c)$  : 11%, 22% et 33% ce qui correspond aux concentrations en hydrogène données dans le tableau III-1.

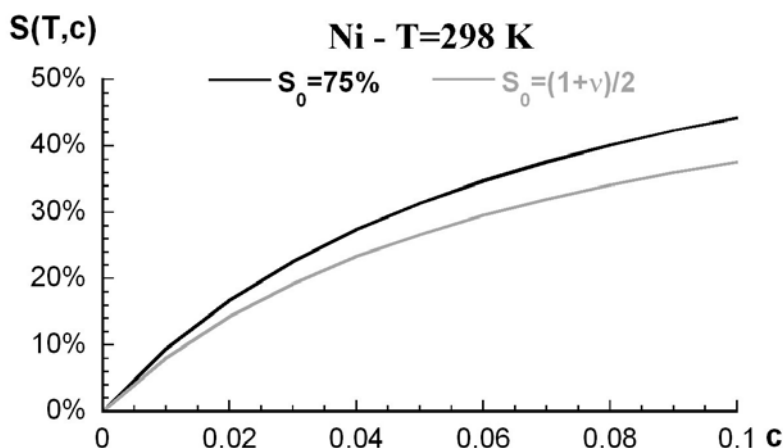


figure III-6. Evolution de l'indice d'écrantage en fonction de la concentration en hydrogène à la température ambiante dans le cas du nickel. Pour ce matériau, nous avons tracé la variation de  $S(T,c)$  pour les deux valeurs de  $S_0$  :  $S_0 = 75\%$  (en noir) ce qui correspond au modèle de Chateau et  $S_0 = \frac{1+\nu}{2}$  (en gris), valeur qui prend en compte les effets de second ordre (constantes élastiques).

tableau III-1 : Correspondance entre l'indice d'écrantage  $S(T,c)$  et la concentration en hydrogène à la température ambiante dans le cas du nickel et du 316L.

	c à 298 K dans Ni		c à 298 K dans 316L	
	$S_0 = (1+\nu)/2$	$S_0 = 75\%$	$S_0 = (1+\nu)/2$	$S_0 = 75\%$
$S(T,c) = 11\%$	0,015	0,012	0,016	0,013
$S(T,c) = 22\%$	0,037	0,029	0,040	0,031
$S(T,c) = 33\%$	0,075	0,055	0,081	0,059

La propriété fondamentale de cet indice d'écrantage est qu'il ne s'exprime qu'en fonction de la température et du taux d'hydrogène. Le caractère général de cette expression permet d'évaluer simplement l'influence de l'hydrogène sur tous les mécanismes de plasticité mettant en jeu des interactions entre composantes coin.

**A l'état stationnaire (flux nul), l'écrantage,  $S(T,c)$ , de la cisssion résolue entre les composantes coin de 2 dislocations quelconques induit par l'hydrogène est indépendant de la distance de séparation entre ces dislocations**

### III.1.3 Energie de ligne

L'énergie de ligne correspond à l'énergie élastique emmagasinée dans le cristal lors de l'introduction d'une dislocation. Dans le modèle classique présenté par Friedel [3], l'énergie de ligne par unité de longueur d'une dislocation dépend de son caractère suivant une fonction  $K(\theta)$  où l'angle  $\theta$  mesure l'écart au caractère vis de la dislocation (pour une coin,  $\theta = 90^\circ$ ). L'expression du travail des contraintes induites par une dislocation est alors :

$$E(\theta) = \frac{\mu b^2}{4\pi} K(\theta) \ln \left( \frac{R}{r_0} \right) \text{ avec } K(\theta) = \frac{1 - \nu \cos^2 \theta}{1 - \nu} \quad (\text{III.22})$$

où  $b$  est la norme du vecteur de Burgers,  $\mu$  le module de cisaillement,  $\nu$  le coefficient de Poisson,  $R$  et  $r_0$  les rayons de coupures externes et internes définis figure III-1. Ce modèle repose donc sur le fait que l'énergie de ligne dépend de la géométrie de la ligne de dislocation uniquement par le biais de son caractère  $\theta$ . Dans le cadre de la théorie de l'élasticité linéaire, les champs de déplacement provenant de différentes sources sont indépendants les uns des autres. En un point donné, ces champs sont sommables linéairement, c'est le principe de superposition. De fait, une dislocation mixte peut être décrite comme la somme d'une dislocation vis et d'une dislocation coin. La détermination de l'influence de l'hydrogène sur l'énergie de ligne d'une dislocation quelconque passe donc par la détermination des tenseurs de déformations et de contraintes autour de sa composante coin en présence d'hydrogène.

Connaissant l'expression des composantes du tenseur des contraintes d'une dislocation coin, équations (III.15) à (III.18), il est alors possible de déterminer l'énergie de ligne d'une dislocation coin en présence d'hydrogène. Le détail des calculs est présenté en Annexe II. Il en ressort que l'énergie de ligne par unité de longueur d'une dislocation coin modifiée par la présence d'hydrogène s'écrit comme suit :

$$E_{coin}^H = \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \left\{ 1 - \frac{S(T,c) \left[ 1 + 3\nu - 2\nu S(T,c) - 4S(T,c) + 2S(T,c)^2 \right]}{1 + \nu - 2S(T,c)} \right\} \ln \left( \frac{R}{r_0} \right).$$

Par le principe de superposition, nous pouvons alors déterminer l'énergie de ligne d'une dislocation de caractère  $\theta$  quelconque. Dans la mesure où l'introduction d'une dislocation vis dans un matériau isotrope ne provoque pas de dilatation (la trace du tenseur des déformations étant nulle), l'hydrogène ne ségrège pas sur une dislocation vis. Les seules composantes non nulles du tenseur des contraintes  $\sigma_{yz}$  ne dépendant que du module de cisaillement, l'énergie de ligne d'une dislocation vis n'est donc pas altérée par l'introduction d'hydrogène. En ségrégeant sur une dislocation, l'hydrogène modifie la dépendance angulaire de l'énergie de ligne par le biais de sa composante coin, c'est à dire le terme  $K(\theta)$  défini par la formule (III.22), qui s'écrit alors :

$$K^H(\theta) = \frac{1 - S^*(T,c) - (\nu - S^*(T,c)) \cos^2 \theta}{1 - \nu} \quad (\text{III.23})$$

$$\text{avec } S^*(T,c) = \frac{S(T,c) \left[ 1 + 3\nu - 2\nu S(T,c) - 4S(T,c) + 2S(T,c)^2 \right]}{1 + \nu - 2S(T,c)}. \quad (\text{III.24})$$

La variation de  $S^*(T,c)$  en fonction de  $S(T,c)$  est représentée figure III-7. Il ressort que dans l'intervalle considéré, à savoir pour un  $S(T,c)$  valant entre 0 et 33%, l'écart entre les deux expressions demeure inférieur à 5%. En revanche, pour des valeurs de l'indice d'écrantage supérieures à 40%, la différence entre ces deux indices croît très rapidement avec  $S(T,c)$ . Or, une telle valeur de  $S(T,c)$  correspond à une teneur en hydrogène de l'ordre de 8% atomique comme en atteste la figure III-6. Compte tenu du caractère « non-physique » d'une telle concentration du moins dans les bases nickel, il est raisonnable de supposer, pour des valeurs ordinaires d'écrantage, que  $S^*(T,c)$  vaut  $S(T,c)$ .

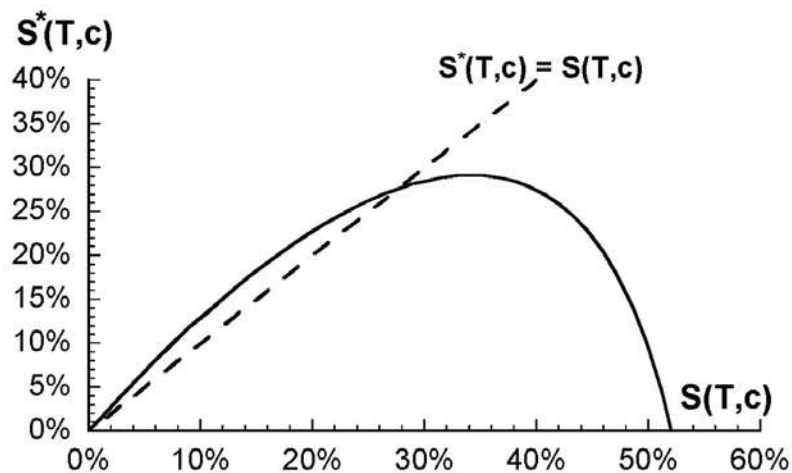


figure III-7. Variation de  $S^*(T,c)$  en fonction de l'indice d'écrantage  $S(T,c)$ .

La figure III-8 illustre l'influence croissante de l'hydrogène sur l'énergie de ligne d'une dislocation quelconque à mesure que le caractère coin de cette dislocation s'accroît. Cette diminution de l'énergie de ligne, induite par la ségrégation de l'hydrogène, est particulièrement marquée dans le cas d'une dislocation purement coin. L'énergie de ligne d'une dislocation vis n'est pas modifiée par la ségrégation d'hydrogène. A la température ambiante, il apparaît, en outre, que l'énergie de ligne d'une dislocation coin devient inférieure à celle d'une dislocation vis pour des teneurs en hydrogène telles que  $c > 0,04$ .

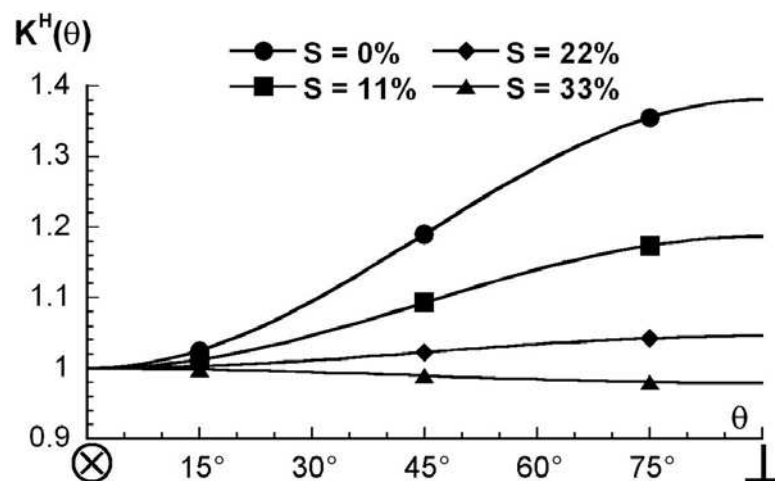


figure III-8. Evolution de  $K^H(\theta)$  en fonction du caractère de la dislocation pour différentes valeurs du taux d'écrantage dans le cas du nickel ( $R/r_0 = 500$ ).

**L'hydrogène diminue l'énergie de ligne d'une dislocation coin.**

### III.1.4 Tension de ligne

Dans ce paragraphe, nous déterminons l'influence de l'hydrogène sur la rigidité d'une dislocation, c'est à dire sur sa tension de ligne. L'analogie entre le comportement d'une dislocation et d'un fil élastique sous tension conduit classiquement à définir la tension de ligne comme la force qui tend à diminuer la longueur de la dislocation pour minimiser son énergie. La tension de ligne d'une dislocation de caractère  $\theta$ , définie comme la variation d'énergie élastique  $\delta W(\theta)$  rapportée à la variation de longueur de dislocation  $\delta \ell$ , est alors donnée par :

$$\zeta(\theta) = \lim_{\delta \ell \rightarrow 0} \left( \frac{\delta W}{\delta \ell} \right). \quad (\text{III.25})$$

Dans ce paragraphe, nous évaluons l'influence de l'hydrogène, à l'état stationnaire, sur la tension de ligne d'une dislocation en nous appuyant tout d'abord sur le modèle classique puis sur les calculs de Jøssang *et al.* [8, 9]. La différence entre ces deux modèles réside dans la prise en compte par ces derniers des interactions élastiques entre segments voisins d'une même ligne.

#### III.1.4.1 Expression simplifiée de la tension de ligne : Modèle de De Wit et Koehler

Le traitement le plus simple de la tension de ligne consiste à calculer la variation d'énergie due à la courbure d'une dislocation en négligeant les interactions entre segments constitutifs de la courbure. Compte tenu de la dépendance angulaire de l'énergie de ligne (III.22), De Wit et Koehler [4] ont déterminé que la tension de ligne locale d'une dislocation s'écrit :

$$\begin{aligned} \zeta(\theta) &= E(\theta) + \frac{\partial^2 E}{\partial \theta^2} = \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \left[ (1+\nu) \cos^2 \theta + (1-2\nu) \sin^2 \theta \right] \ln \left( \frac{R}{r_0} \right) \\ \text{soit } \zeta(\theta) &= \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \left[ 1 - 2\nu + 3\nu \cos^2 \theta \right] \ln \left( \frac{R}{r_0} \right). \end{aligned} \quad (\text{III.26})$$

La ségrégation d'hydrogène sur le segment de dislocation se courbant se traduit par l'introduction d'un terme d'écrantage dans l'expression de la tension de ligne :

$$\zeta^H(\theta) = \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \left[ 1 - 2\nu + S^*(T, c) + 3 \cos^2 \theta (\nu - S^*(T, c)) \right] \ln \left( \frac{R}{r_0} \right) \quad (\text{III.27})$$

avec  $S^*(T, c) = S(T, c)$  pour  $c < 10\%$ . L'évolution de la tension de ligne  $\zeta^H(\theta)$  en fonction du caractère de la dislocation est représentée graphiquement figure III-9.

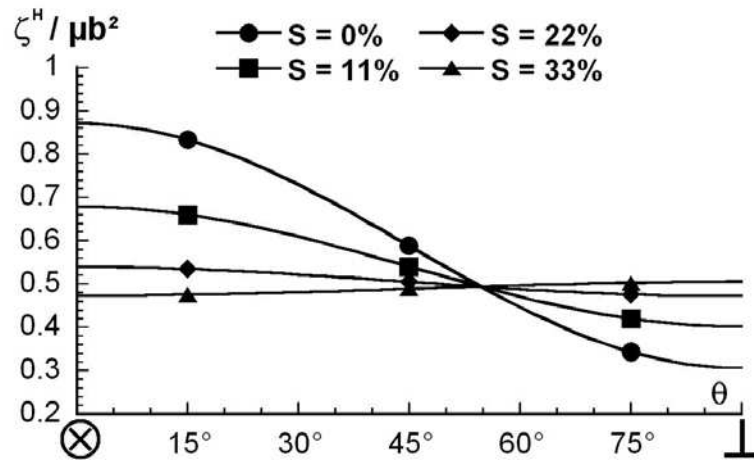


figure III-9. Evolution de la tension de ligne normalisée par  $\mu b^2$  en fonction du caractère de la dislocation pour différentes valeurs du taux d'écrantage ( $R/r_0 = 500$ ).

#### III.1.4.2 Introduction des interactions entre segments : Modèle de Jøssang *et al.*

La détermination de la tension de ligne au sens de Jøssang *et al.* [8, 9] requiert le calcul du bilan énergétique induit par la courbure d'une branche de dislocation. Dans ce calcul sont inclus non seulement l'énergie de ligne des segments considérés mais aussi les énergies d'interaction entre les branches de l'arc de dislocation courbé. Le calcul des énergies d'interaction est d'autant plus important que la ségrégation d'hydrogène sur les dislocations induit un comportement distinct en fonction du caractère des dislocations. Pour prendre en considération ces interactions, il est alors nécessaire de décomposer le segment de dislocation suivant le schéma présenté figure III-10.

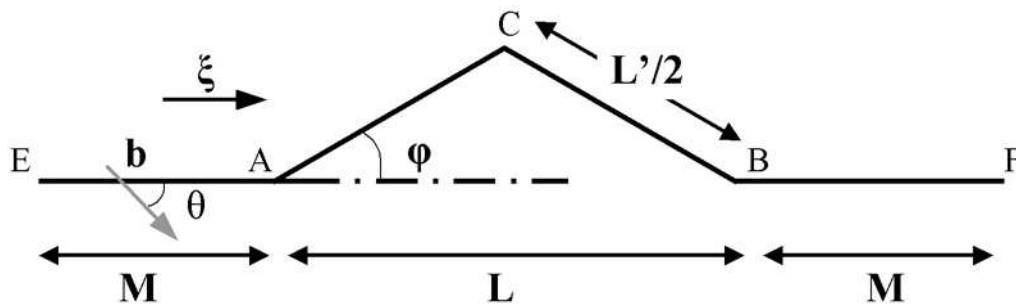


figure III-10. Modélisation de la courbure d'une dislocation d'après Jøssang *et al.* [8, 9] avec  $b$  vecteur du Burgers de la dislocation considérée,  $\xi$  le vecteur unitaire parallèle à la ligne de dislocation,  $L$  la longueur du segment courbé et  $M$  la longueur des branches non courbées (dans la suite,  $M$  sera considérée comme infinie).



La courbure induit un accroissement énergétique qui se décompose en termes d'énergie de ligne  $\Delta W_s$  et d'énergie d'interaction  $\Delta W_{int}$ . Compte tenu des symétries du segment considéré, le bilan énergétique induit par la courbure  $\Delta W$  s'écrit alors :

$$\Delta W = 2W_s(AC) + W_{int}(AC, CB) - W_s(AB) + 2W_{int}(AC, EA) + 2W_{int}(AC, BF) - 2W_{int}(EA, AB) \quad (III.28)$$

A partir du modèle de Jøssang *et al.* ensuite développé par Hirth *et al.* [9, 10], nous allons, dans un premier temps, évaluer l'influence de l'écrantage sur l'énergie d'une dislocation mixte se courbant dans son plan de glissement, puis sur la tension de ligne. Compte tenu du principe de superposition, la détermination du bilan énergétique (donc la tension de ligne) d'une dislocation mixte se décompose comme suit :

$$\Delta W = \Delta W_{vis} \cos^2 \theta + \Delta W_{coin} \sin^2 \theta \quad (III.29)$$

L'énergie de ligne des segments AB et AC est donnée par l'équation (III.22) dont la modification de la dépendance angulaire induite par l'hydrogène est donnée par l'équation (III.23). Le calcul des énergies d'interaction entre 2 segments d'une même dislocation s'écrit :

$$W_{12} = \frac{\mu}{4\pi} \left\{ (b \cdot \xi_1)(b \cdot \xi_2) + \frac{1}{1-\nu} [b \cdot (\xi_1 \times e_3)] [b \cdot (\xi_2 \times e_3)] \right\} I(x, y) \quad (III.30)$$

$$I(x, y) = x \ln \left( \frac{R(x, y) + y - x \cos \varphi}{x} \right) + y \ln \left( \frac{R(x, y) + x - y \cos \varphi}{y} \right),$$

où  $\xi$  représente le vecteur de ligne des segments,  $e_3 = \frac{\xi_1 \times \xi_2}{|\xi_1 \times \xi_2|}$  correspond au vecteur unitaire

définissant le repère non-orthogonal de travail ( $\xi_1, \xi_2, e_3$ ) et  $I(x, y)$  est une fonction définissant les relations géométriques entre les segments considérés avec  $R(x, y) = \sqrt{x^2 + y^2 - 2xy \cos \varphi}$ .

Il est à noter que le repère sera sélectionné de telle sorte que les coordonnées seront toujours positives. Compte tenu des effets de l'hydrogène sur la force d'interaction de paire présentée dans la partie III.1.2, les effets d'écrantage vont se manifester par une altération de l'énergie d'interaction qui s'écrit alors :

$$W_{12} = \frac{\mu}{4\pi} \left\{ (b \cdot \xi_1)(b \cdot \xi_2) + \frac{1-S(T, c)}{1-\nu} [b \cdot (\xi_1 \times e_3)] [b \cdot (\xi_2 \times e_3)] \right\} I(x, y) \quad (III.31)$$

Les expressions de  $\Delta W_{vis}$  et  $\Delta W_{coin}$  sont obtenues pour  $M \rightarrow \infty$  (figure III-10), après avoir effectué un développement en série de Taylor autour de  $\varphi = 0^\circ$ . En l'absence

d'hydrogène, le bilan énergétique de la courbure d'une dislocation initialement vis est donné par :

$$\Delta W_{vis} = \frac{\mu b^2 \varphi^2 L}{8\pi(1-\nu)} \left[ (1+\nu) \left( \ln \left( \frac{L}{r_0} \right) - 2 \ln 2 \right) - \frac{1}{2} + \frac{\nu}{2} \right],$$

les effets de l'hydrogène se traduisent alors par une modification de l'expression précédente qui s'écrit alors :

$$\Delta W_{vis}^H = \frac{\mu b^2 L}{8\pi(1-\nu)} \left[ \begin{array}{l} (1+\nu - 2S^*(T,c)) \ln \left( \frac{L}{r_0} \right) \\ -2(1+\nu - S^*(T,c) - S(T,c)) \ln 2 \\ -\frac{1}{2} + \frac{\nu}{2} \end{array} \right] \varphi^2 \quad (\text{III.32})$$

Pour une dislocation coin entourée de son atmosphère d'hydrogène, on trouve :

$$\Delta W_{coin}^H = \frac{\mu b^2 L}{4\pi(1-\nu)} \left\{ \begin{array}{l} (S(T,c) - S^*(T,c)) \ln 2 \\ \left[ \begin{array}{l} (1-2\nu + S^*(T,c)) \ln \left( \frac{L}{r_0} \right) \\ -2 \left( 1-\nu + \frac{S^*(T,c) + S(T,c)}{2} \right) \ln 2 \\ -\frac{1}{2} - S^*(T,c) + \frac{3S(T,c)}{2} \end{array} \right] \end{array} \right\} \quad (\text{III.33})$$

Du fait du faible écart existant entre les indices  $S(T,c)$  et  $S^*(T,c)$  pour des valeurs de  $S(T,c)$  inférieures à 33% (figure III-7), ces deux taux d'écrantage seront considérés comme égaux dans la suite de ce calcul. Les équations (III.32) et (III.33) s'écrivent alors respectivement :

$$\Delta W_{vis}^H = \frac{\mu b^2 \varphi^2 L}{8\pi(1-\nu)} \left[ (1+\nu - 2S(T,c)) \left( \ln \left( \frac{L}{r_0} \right) - 2 \ln 2 \right) - \frac{1}{2} + \frac{\nu}{2} \right] \quad (\text{III.34})$$

$$\Delta W_{coin}^H = \frac{\mu b^2 \varphi^2 L}{8\pi(1-\nu)} \left[ (1-2\nu + S(T,c)) \left( \ln \left( \frac{L}{r_0} \right) - 2 \ln 2 \right) - \frac{1}{2} + \frac{S(T,c)}{2} \right] \quad (\text{III.35})$$

A partir de la relation (III.29), et, compte tenu de la définition de la tension de ligne (III.25) avec  $\partial\ell = \frac{L\varphi^2}{2}$  dans le cas d'un arc de faible courbure, l'expression de la tension de ligne s'écrit en présence d'hydrogène :

$$\zeta^H = \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \left\{ \begin{aligned} &\cos^2(\theta) \left[ (1+\nu - 2S(T,c)) \left( \ln\left(\frac{L}{r_0}\right) - 2\ln 2 \right) - \frac{1}{2} + \frac{\nu}{2} \right] + \\ &\sin^2(\theta) \left[ (1-2\nu + S(T,c)) \left( \ln\left(\frac{L}{r_0}\right) - 2\ln 2 \right) - \frac{1}{2} + \frac{S(T,c)}{2} \right] \end{aligned} \right\} \quad (III.36)$$

La figure III-11 illustre l'évolution de la tension de ligne au sens de Jøssang *et al.* en fonction du caractère  $\theta$  de la dislocation pour différents niveaux d'écrantage.

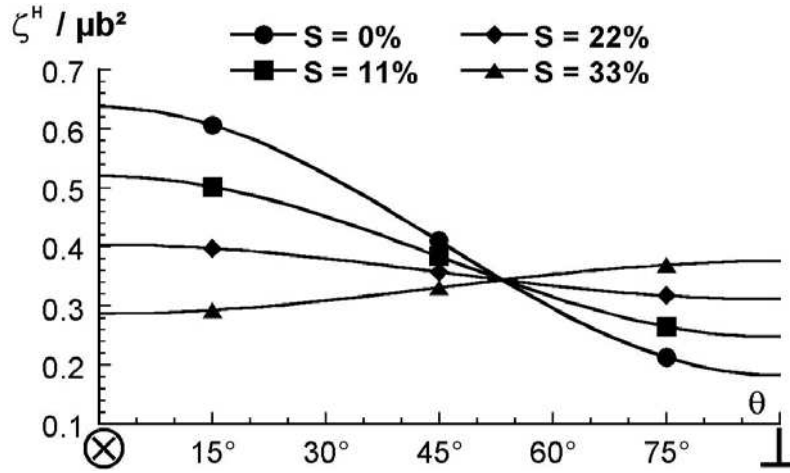


figure III-11. Evolution de la tension de ligne au sens de Jøssang *et al.* normalisée par  $\mu b^2$  en fonction du caractère de la dislocation pour différentes valeurs du taux d'écrantage (avec  $L = R$  et  $R/r_0 = 500$ ).

#### III.1.4.3 Bilan et comparaison entre les deux modèles

Ces deux modèles concordent sur l'évolution du comportement de la tension de ligne en fonction de la concentration en hydrogène. Il apparaît ainsi que la ségrégation d'hydrogène sur une dislocation initialement vis tend à faciliter sa courbure alors que les effets d'écrantage accroissent la rigidité des dislocations coin. Cet effet aura donc une incidence sur la forme théorique d'une boucle de dislocation, comme nous le verrons dans la partie III.2.

La différence entre ces deux modèles réside dans le calcul du bilan énergétique induit par la courbure de la dislocation. En effet, le modèle de Jøssang *et al.* prend en compte les interactions entre tous les segments constitutifs de l'arc, contrairement à celui de De Wit et

Koehler. Au regard des équations (III.26) et (III.36), il apparaît que la différence entre ces deux modèles s'atténue pour de grandes valeurs du rayon de courbure, c'est à dire à mesure que le terme logarithmique l'emporte sur le terme constant induit par le modèle de Jøssang *et al.*.

**L'hydrogène diminue la tension de ligne des dislocations vis et rigidifie les dislocations coin.**

## **III.2 Effets de l'écrantage sur les mécanismes de plasticité**

Nous avons rappelé, dans le paragraphe précédent, que la diffusion de l'hydrogène dans les zones en traction modifie le champ de contrainte autour d'une dislocation coin provoquant un écrantage des interactions de paires entre dislocations coin. A partir de l'expression du tenseur des contraintes d'une dislocation coin en présence d'hydrogène, nous avons mis en évidence le fait que l'hydrogène altère la dépendance angulaire de l'énergie de ligne d'une dislocation et, ce faisant, affecte sa tension de ligne.

Dans la mesure où les interactions à courte distance entre dislocations jouent un rôle fondamental dans la compréhension des mécanismes de plasticité, il paraît donc fondamental de « revisiter » les résultats classiques de la plasticité à la lumière des effets induits par l'hydrogène. Pour ce faire, nous nous avons opté pour un modèle de tension de ligne qui présente l'intérêt de permettre une résolution analytique des problèmes posés. De plus, en dépit de simplifications importantes, le modèle classique de De Wit et Koehler [4] apporte un éclairage pertinent sur de nombreux mécanismes élémentaires (multiplication, formation de jonctions). Nous examinerons ensuite l'influence de l'hydrogène sur les mécanismes de plasticité mettant en jeu des dislocations partielles, notamment le glissement dévié et le comportement des jonctions entre dislocations.

### **III.2.1 Mécanisme de multiplication**

Au cours de la déformation plastique, la densité de dislocations mobiles initialement présentes va décroître à mesure que celles-ci vont sortir du cristal, s'annihiler entre elles ou être immobilisées par d'autres défauts. Frank et Read [11] ont, dès 1950, imaginé un mécanisme de multiplication permettant de générer de nouvelles dislocations pouvant participer à la déformation. Parmi les différents mécanismes de multiplication (par glissement dévié, par mécanisme de pôle...), nous nous focaliserons sur l'activation des sources de Frank-Read. Nous déterminerons ensuite le comportement d'une boucle de dislocation isotrope en présence d'hydrogène.

## III.2.1.1 Activation d'une boucle de Frank-Read

Considérons une dislocation isolée et épinglée en ses deux extrémités sous l'action d'une contrainte appliquée, représentée sur la figure III-12 a).

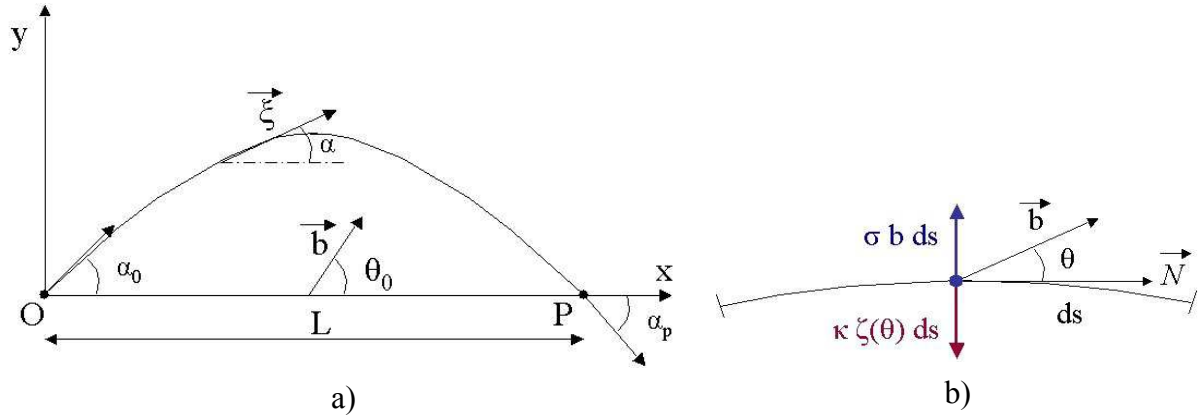


figure III-12. a) Géométrie d'une source de Frank-Read. La dislocation courbée est définie par son vecteur de Burgers  $b$ , son vecteur de ligne  $\xi$  et le caractère de la dislocation non courbée  $\theta_0$ . b) Equilibre d'un segment de dislocation  $ds$  soumis à la force de Peach-Koehler  $\sigma b ds$ . Cette force est contre-balançée par la tension de ligne  $\zeta(\theta)$  induite par la courbure  $\kappa$  du segment considéré.

En tout segment infinitésimal de la dislocation, la force de Peach-Koehler est en équilibre avec la tension de ligne induite par la courbure de la dislocation (figure III-12 b)). Cette configuration d'équilibre correspond au bilan des force suivant :

$$\sigma b \vec{N} = -\kappa \zeta(\theta) \vec{N} \quad (\text{III.37})$$

où  $\zeta(\theta)$  représente la tension de ligne du segment considéré,  $\kappa$  sa courbure,  $\sigma$  la contrainte appliquée et  $\vec{N}$  la normale au segment. L'expression (III.37) peut aussi s'écrire :

$$\begin{aligned} \sigma b \vec{N} &= -\frac{d}{ds} \left( E(\theta) \vec{T} + \frac{dE(\theta)}{d\theta} \vec{N} \right) \\ \text{avec } \vec{F} &= E(\theta) \vec{T} + \frac{dE(\theta)}{d\theta} \vec{N} \end{aligned} \quad (\text{III.38})$$

où  $E(\theta)$  représente l'énergie de ligne de la dislocation,  $ds$  une portion infinitésimale de dislocation et  $\vec{T}$  la tangente. Cette situation d'équilibre correspond au système d'équations différentielles établi par De Wit et Koehler [4] :

$$\frac{d\alpha}{dx} \cos(\alpha) \zeta(\theta) = -\sigma b \quad (\text{III.39})$$

$$\frac{d\alpha}{dy} \sin(\alpha) \zeta(\theta) = -\sigma b \quad (\text{III.40})$$

où  $\alpha$  représente l'angle entre l'axe des abscisses (vecteur de ligne de la dislocation non courbée) et le vecteur de ligne de la dislocation et  $\theta$  le caractère de la dislocation au point considéré soit un angle de  $\alpha - \theta_0$  par rapport au caractère vis du segment.

Afin d'évaluer l'influence de l'écrantage sur la contrainte critique d'activation d'une boucle de Frank-Read, nous nous sommes appuyés sur deux calculs de la tension de ligne présentés dans la partie III.1.4, à savoir la formulation de De Wit et Koehler et celle de Jøssang *et al.* [8, 9]. En revanche, la suite du calcul est développé analytiquement en s'appuyant sur le modèle de De Wit et Koehler par souci de clarté dans l'écriture des équations. Il ressort de ces calculs que l'hydrogène diminue la tension de ligne des dislocations vis et rigidifie les dislocations de type coin. En revanche, la force de Peach et Koehler induite par l'application d'une contrainte extérieure n'est pas altérée par la présence d'hydrogène comme le montre le calcul présenté en Annexe III. L'intégration de ces équations conduit alors au système suivant :

$$E^H(\alpha - \theta_0) \sin(\alpha) + \frac{dE^H}{d\theta}(\alpha - \theta_0) \cos(\alpha) = -\sigma b x + A_1 \quad (\text{III.41})$$

$$E^H(\alpha - \theta_0) \cos(\alpha) - \frac{dE^H}{d\theta}(\alpha - \theta_0) \sin(\alpha) = \sigma b y + A_2 \quad (\text{III.42})$$

$A_1$  et  $A_2$  étant 2 constantes d'intégrations. Ces constantes ainsi que les valeurs des angles  $\alpha_0$  et  $\alpha_p$  définis sur la figure III-12 a) peuvent être calculées à partir des conditions aux limites définies aux points O et P.  $A_1$  et  $A_2$  correspondent alors aux composantes suivant les axes des ordonnées et des abscisses de la force exercée sur la dislocation en O :

$$A_1 = E^H(\alpha_0 - \theta_0) \sin(\alpha_0) + \frac{dE^H}{d\theta}(\alpha_0 - \theta_0) \cos(\alpha_0) = F_0^y$$

$$A_2 = E^H(\alpha_0 - \theta_0) \cos(\alpha_0) - \frac{dE^H}{d\theta}(\alpha_0 - \theta_0) \sin(\alpha_0) = F_0^x.$$

Dans le modèle de tension de ligne de De Wit et Koehler, la contrainte critique d'activation d'une boucle peut alors être déterminée à partir du système d'équation correspondant aux conditions d'équilibre en P :

$$\alpha_p = \alpha_0 - \pi$$

$$E^H(\alpha_p - \theta_0) \sin(\alpha_p) + \frac{dE^H}{d\theta}(\alpha_p - \theta_0) \cos(\alpha_p) = -\sigma bL + F_0^y$$

$$E^H(\alpha_p - \theta_0) \cos(\alpha_p) - \frac{dE^H}{d\theta}(\alpha_p - \theta_0) \sin(\alpha_p) = F_0^x.$$

Ce modèle permet de déterminer une forme analytique de la contrainte critique d'activation. Cette contrainte critique qui peut être donnée en fonction du terme adimensionnel  $\sigma_c^*$  s'écrit alors comme suit :

$$\sigma_c = \frac{\mu b}{L} \sigma_c^* \ln\left(\frac{R}{r_0}\right). \quad (\text{III.43})$$

La figure III-13 illustre l'influence de l'hydrogène sur l'évolution du terme adimensionnel en fonction du caractère de la dislocation  $\theta$ .

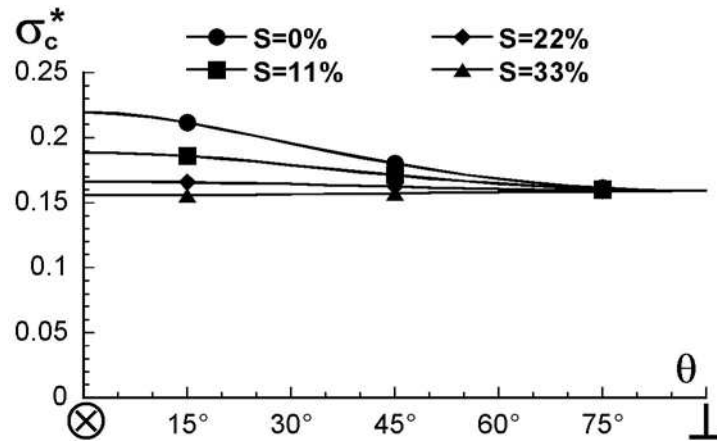


figure III-13. Evolution du terme adimensionnel  $\sigma_c^*$  de la contrainte critique d'activation en fonction du caractère de la dislocation  $\theta$  pour différentes valeurs du taux d'écrantage.

La résolution du problème dans le cas d'un modèle de tension de ligne de type Jøssang *et al.* ne peut s'écrire sous une forme analytique comparable à la formule (III.43). Dans le cadre de ce modèle, les calculs s'appuient sur les équations (III.36), (III.39) et (III.40) et sont résolus numériquement. La figure III-14 illustre la variation de la contrainte d'activation d'une boucle de Frank-Read normalisée par  $\mu b/L$  en fonction du caractère du segment de dislocation initial.

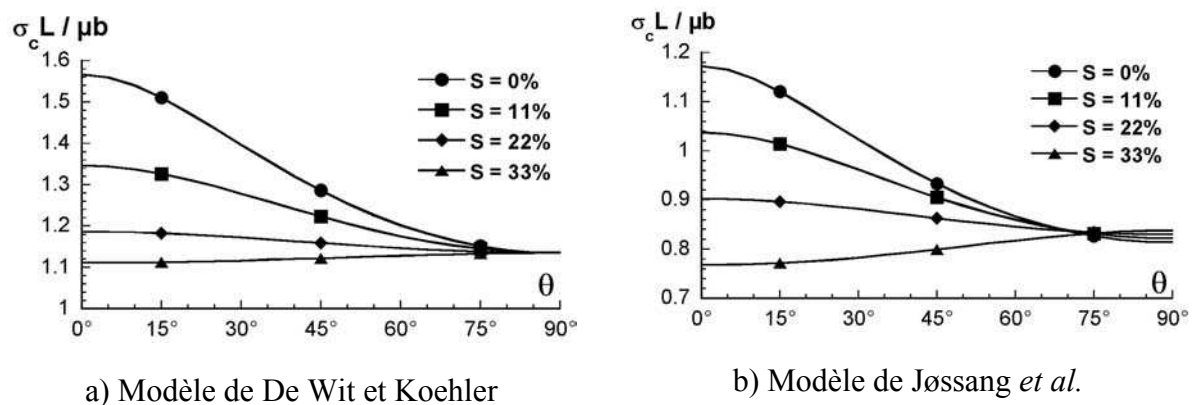


figure III-14. Evolution de la contrainte critique d'activation en fonction du caractère de la dislocation avec  $R/r_0 = 1250$  pour différentes valeurs du taux d'écrantage pour deux expressions de la tension de ligne a) Modèle de De Wit et Koehler, b) Modèle de Jøssang *et al.*.

En l'absence d'hydrogène ( $S(T,c) = 0\%$ ), les dislocations vis sont plus rigides que les dislocations coin (figure III-9). Il en résulte qu'il est plus difficile de courber une dislocation vis ancrée en deux points qu'une dislocation coin comme l'indique Ashby [12] dès 1966. En outre, l'évolution de la contrainte d'activation d'une boucle de Frank-Read, dans le modèle de De Wit et Koehler, est en accord avec celle observée dans le cadre de modèles plus complexes et réalistes [13]. De plus, il apparaît que plus l'écrantage augmente, plus la contrainte critique d'activation d'une dislocation initialement vis diminue. Ce résultat est en accord avec ceux obtenus précédemment sur l'influence du taux d'écrantage sur la tension de ligne d'une dislocation vis. Dans un calcul de type De Wit et Koehler, il apparaît que l'écrantage n'affecte pas la contrainte critique d'activation d'une dislocation initialement coin. Cette particularité est corrigée dans le cadre d'un calcul basé sur l'expression de Jøssang *et al.* modifiée (III.36) mais l'effet sur les dislocations coin demeure très faible. La prise en compte des interactions entre segments permet donc d'obtenir un résultat plus en accord avec le fait que l'hydrogène rigidifie les dislocations coin. En revanche, le calcul de Jøssang minimise la valeur de la contrainte d'activation globale sans toutefois altérer l'allure générale de son évolution.

**L'hydrogène facilite l'activation des sources de Frank-Read.**

### III.2.1.2 Expansion isotrope d'une boucle

Considérons une boucle de dislocation générée par une source de Frank-Read. Par commodité, nous supposons dans la suite du calcul que cette dislocation est isotrope. D'un point de vue énergétique, l'écart entre une telle dislocation et une boucle hexagonale est relativement faible comme l'ont montré Hirth *et al.* [10]. Le traitement de la force



d'expansion d'une boucle est réalisé à partir de la boucle décrite figure III-15. En considérant une boucle isotrope, nous négligeons toute distorsion induite par la variation de la tension de ligne avec le caractère de la dislocation. En l'absence d'hydrogène, nous avons vu que les parties vis sont plus rigides que les parties coin. Il en résulte qu'une boucle de dislocation a une forme allongée suivant la direction vis. Or, l'hydrogène provoque une diminution de la rigidité des parties vis et une augmentation de la tension de ligne des parties coin (figure III-9). L'hydrogène tend ainsi à rendre les boucles plus isotropes.

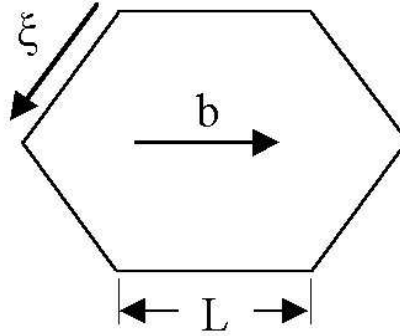


figure III-15. Modélisation d'une boucle de dislocation isotrope en segments rectilignes.

En nous appuyant sur la démarche proposée par Jøssang *et al.* [8, 9], nous décomposons l'énergie totale de la boucle présentée figure III-15 en termes d'énergie de ligne et d'énergie d'interaction. En présence d'hydrogène, l'énergie de ligne d'une boucle et le bilan énergétique des interactions entre les branches sont respectivement donnés par les équations suivantes :

$$\Delta W_{Self}^H = \frac{3}{4} \frac{\mu b^2 L}{\pi} \frac{(2 - \nu - S^*(T, c))}{1 - \nu} \ln\left(\frac{L}{r}\right), \quad (\text{III.44})$$

$$\Delta W_{int}^H = \frac{3}{4} \frac{\mu b^2 L}{\pi} \frac{(2 - \nu - S(T, c))}{1 - \nu} \left( 2 - \sqrt{3} - \frac{7}{2} \ln 3 + 2 \ln(2\sqrt{3} + 3) \right). \quad (\text{III.45})$$

L'expression de l'énergie totale d'une boucle hexagonale est alors :

$$W^H = \frac{3\mu b^2 L}{4\pi(1-\nu)} \left[ 0,16(2 - \nu - S(T, c)) + (2 - \nu - S^*(T, c)) \ln\left(\frac{L}{r}\right) \right] \quad (\text{III.46})$$

Il est à noter qu'en l'absence d'hydrogène, c'est à dire pour  $S(T, c) = 0\%$ , nous retrouvons bien le résultat établi par Hirth *et al.*. Afin de nous assurer de la validité de notre approximation, nous avons évalué l'écart qui existe, en l'absence d'hydrogène, entre la boucle hexagonale dans la configuration modélisée précédemment et une boucle ayant un vecteur de Burgers

perpendiculaire à celui du modèle. La figure III-16 confirme la validité de l'approximation de la boucle hexagonale dans la mesure où coté l'écart entre les deux configurations est inférieur à 1% pour toute boucle de coté  $L > 100b$ .

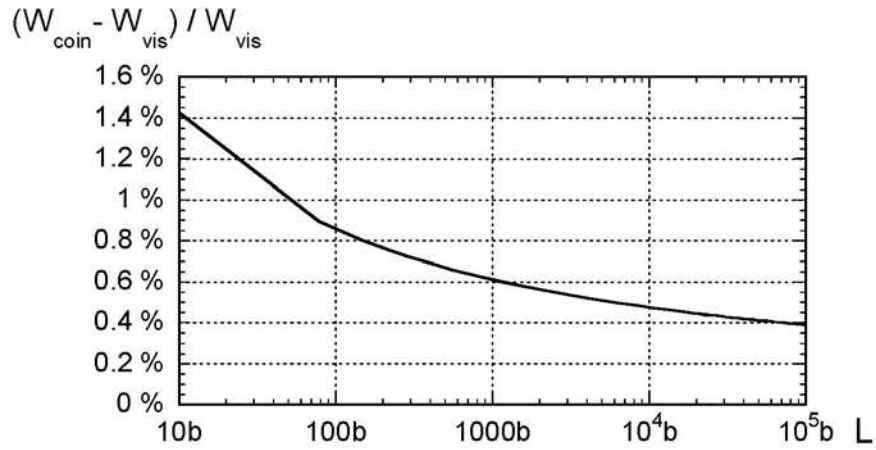


figure III-16. Ecart entre une configuration « vis » (représentée figure III-15) et une configuration « coin » de la boucle hexagonale en fonction de la longueur d'un segment pour  $S(T,c) = 0\%$ .

Définissons la force d'expansion isotrope d'une boucle par la formule suivante :

$$F = \frac{\partial W}{\partial L} \quad (\text{III.47})$$

Le rapport de la force d'expansion en présence d'hydrogène sur la force d'expansion en l'absence d'hydrogène est alors donné par la relation (III.48) avec  $S(T,c) \approx S^*(T,c)$ . L'évolution de l'écrantage de la force d'expansion induit par l'hydrogène est décrit par la figure III-17.

$$\frac{F^H}{F} \approx 1 - 0,58 S(T,c) \quad (\text{III.48})$$

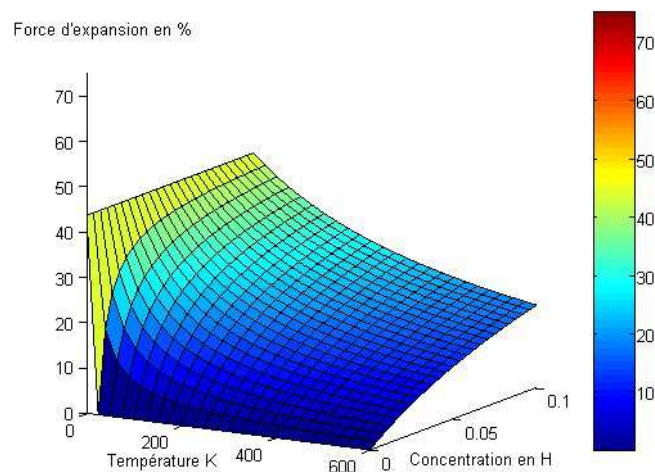


figure III-17. Evolution de l'écrantage la force d'expansion isotrope d'une boucle en fonction de la température et de la concentration, normalisée par la valeur en l'absence d'hydrogène ( $S(T,c) = 0\%$ ).

**L'hydrogène tend à faciliter le mécanisme de multiplication et d'expansion d'une boucle de dislocation en abaissant la contrainte critique d'activation d'une source de Frank-Read et en diminuant sa force d'expansion. La présence d'hydrogène doit donc induire une plus forte localisation du glissement dans la mesure où l'hydrogène facilite l'activation des sources existantes et la multiplication.**

### III.2.2 Stabilité des jonctions entre dislocations parfaites

Au cours de la déformation plastique, l'activation des sources de dislocations génère un grand nombre de dislocations qui glissent sous l'effet de la contrainte appliquée dans leur plan de glissement. Ces dislocations vont alors interagir avec d'autres dislocations. Ces interactions peuvent être attractives ou répulsives. Lorsque l'interaction est attractive, les deux dislocations vont former une jonction et réduire ainsi leur énergie de configuration. Franchir un tel type d'ancrage nécessite donc de l'énergie. Ces interactions à courte distance entre dislocations jouent un rôle fondamental dans les mécanismes d'écrouissage. Dans un cristal CFC, les différents types de réactions entre une dislocation appartenant à un système de glissement donné et des dislocations d'autres systèmes sécants ont été répertoriés par Hirth [14]. Il est possible de former trois types de jonctions : la jonction de Lomer, la jonction glissile et la jonction de Hirth. Nous examinerons les effets induits par la présence de l'hydrogène sur les interactions entre deux dislocations parfaites en l'absence et en présence d'une contrainte appliquée en nous appuyant sur le modèle de tension de ligne décrit dans le

paragraphe précédent. Dans la mesure du possible, nous établirons des liens avec des modèles plus complexes.

### III.2.2.1 Formation des jonctions

Le mécanisme de formation d'une jonction, proposé par Saada [15], est représenté figure III-18. Il s'appuie sur une hypothèse forte, à savoir que les segments considérés sont et demeurent rigides avant et après interaction. Par souci de simplicité, nous supposons de plus que les segments initiaux sont de même longueur et se coupent en leur milieu. La configuration initiale, représentée figure III-18 a), met en présence deux dislocations épinglées  $D_1$  et  $D_2$ , de même longueur  $L$  et de vecteur de Burgers respectifs  $b_1$  et  $b_2$ . Le nœud quadruple ainsi formé est défini par les angles  $\varphi_1$  et  $\varphi_2$ . Lors de la formation de la jonction, ce nœud se dissocie alors en deux nœuds triples et les angles d'intersection initiaux ( $\varphi_1, \varphi_2$ ) évoluent jusqu'à atteindre leur position d'équilibre ( $\varphi_1^*, \varphi_2^*$ ). Cette configuration d'équilibre représentée figure III-18 b) aboutit à la formation d'une jonction de vecteur de Burgers  $\vec{b}_j = \vec{b}_1 + \vec{b}_2$  et de longueur  $L_j$ .

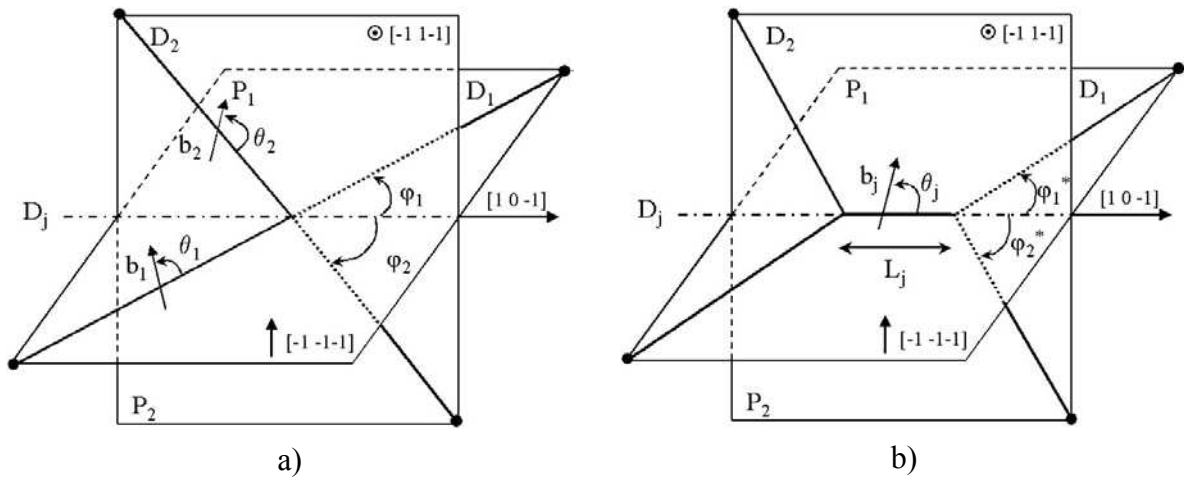


figure III-18. Mécanisme de formation d'une jonction entre dislocations parfaites selon Saada [15]. a) Configuration initiale. L'intersection entre les dislocations  $D_1$  (de vecteur de Burgers  $b_1$  et de caractère  $\theta_1$ ) et  $D_2$  ( $b_2, \theta_2$ ) appartenant respectivement aux plans de glissement  $P_1$  et  $P_2$  définit un nœud quadruple caractérisé par les angles  $\varphi_1$  et  $\varphi_2$ . b) Configuration d'équilibre. La jonction formée est caractérisée par son vecteur de Burgers  $b_j$ ,  $\theta_j$  son caractère et sa longueur  $L_j$ .  $D_1$  et  $D_2$  forment alors des angles  $\varphi_1^*$  et  $\varphi_2^*$  par rapport à l'axe de jonction  $D_j$ .

Les interaction entre le système  $\frac{1}{2}[1\bar{1}0](\bar{1}\bar{1}\bar{1})$  et les systèmes  $\frac{1}{2}[011](\bar{1}1\bar{1})$ ,  $\frac{1}{2}[\bar{1}01](\bar{1}1\bar{1})$ ,  $\frac{1}{2}[110](\bar{1}1\bar{1})$  permettent de former respectivement des jonctions de type

Lomer, glissile et Hirth. La jonction de Lomer présente un caractère coin, elle ne peut glisser dans aucun des deux plans. Elle est donc sessile. En revanche, la jonction glissile, de type mixte, est mobile dans le plan  $P_1$ , elle pourra ainsi se courber entre ses points d'ancrage et glisser dans le plan considéré. La jonction de Hirth est obtenue par la rencontre entre deux dislocations ayant des vecteurs de Burgers perpendiculaires. Elle est sessile, dans la mesure où son vecteur de Burgers est de type  $\langle 100 \rangle$ .

La détermination des conditions de formation des jonctions peut se faire de deux manières équivalentes. L'une revient à déterminer la configuration d'énergie élastique minimale d'un système constitué initialement de deux segments de dislocation et au final de cinq segments. L'autre méthode, que nous emploierons, consiste à supposer la jonction formée et à déterminer les conditions d'équilibre aux deux nœuds triples encadrant la jonction. Dans la mesure où, par construction, les nœuds triples ne peuvent se déplacer que le long de l'axe  $D_j$ , intersection entre les plans  $P_1$  et  $P_2$ , seul l'équilibre entre les forces projetées suivant l'axe de la jonction est à prendre en considération. En assimilant l'axe de la jonction à l'axe des abscisses, cette condition d'équilibre s'exprime alors par :

$$F_j^x = F_1^x + F_2^x \quad (\text{III.49})$$

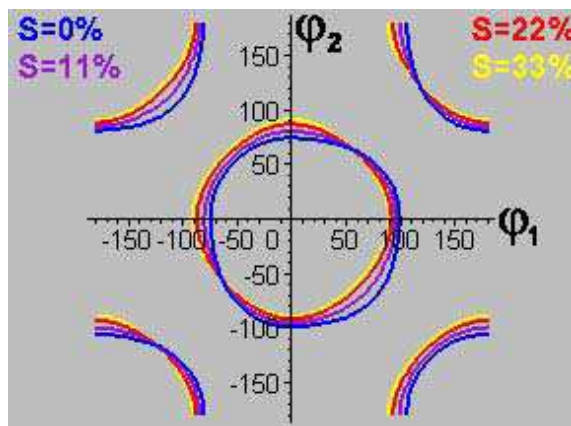
Considérons tout d'abord le cas de la formation d'une jonction en l'absence de contrainte appliquée. A partir de la définition (III.38), nous pouvons exprimer les forces exercées par chaque dislocation sur un nœud triple dans sa configuration d'équilibre, représentée figure III-18 b), comme suit :

$$\begin{aligned} F_1^x &= E_1 (\theta_1 + \varphi_1^*) \cos \varphi_1^* - \frac{dE_1 (\theta_1 + \varphi_1^*)}{d\theta} \sin \varphi_1^* \\ F_2^x &= E_2 (\theta_2 + \varphi_2^*) \cos \varphi_2^* - \frac{dE_2 (\theta_2 + \varphi_2^*)}{d\theta} \sin \varphi_2^* \\ F_j^x &= E_j (\theta_j) \end{aligned}$$

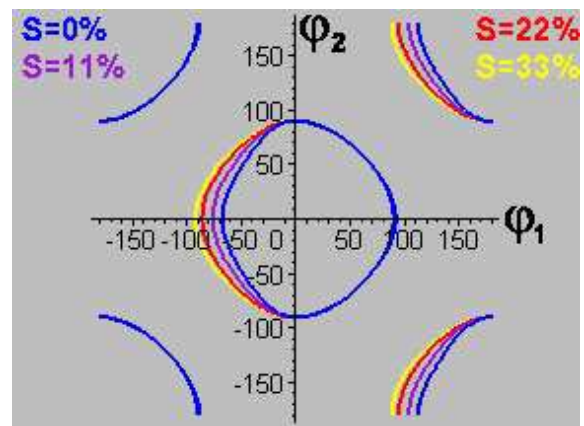
où  $E_i$  ( $i = 1, 2, j$ ) représente l'énergie de ligne par unité de longueur des segments de dislocations constitutifs,  $\theta_i$  le caractère de ces dislocations et l'angle  $\varphi_i^*$  correspond à l'angle entre le segment de dislocation d'indice  $i$  ( $i = 1, 2$ ) et l'axe de la jonction dans la configuration d'équilibre. Il ressort de ce calcul que le résultat final est indépendant de la longueur des dislocations. En outre, le seul paramètre caractéristique du matériau intervenant est le coefficient de Poisson. Le terme  $\mu b^2 \ln(R/r_0)$  de l'énergie de ligne (III.22) peut se simplifier à condition de tenir compte du fait que la norme du vecteur de Burgers de la jonction  $|b_j|$  est le même que celui des dislocations initiales  $|b_i|$ , à l'exception de la jonction de Hirth, où  $|b_j| = \sqrt{2} |b_i|$ .

### a) Domaine d'existence des jonctions

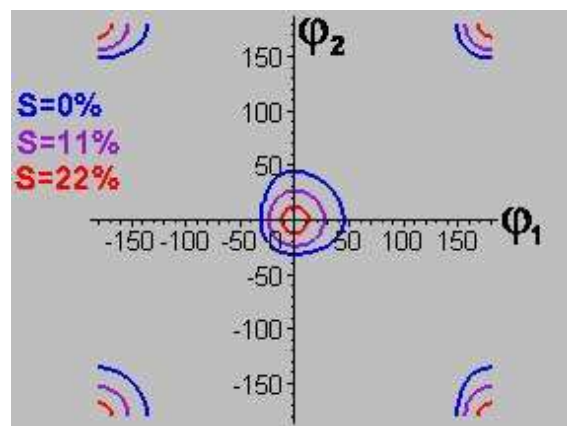
Lors de la formation d'une jonction, un nœud quadruple se dissocie en deux nœuds triples provoquant une évolution des angles  $(\varphi_1, \varphi_2)$  en  $(\varphi_1^*, \varphi_2^*)$  à l'équilibre. Considérons le cas où initialement les angles  $(\varphi_1, \varphi_2)$  valent  $(\varphi_1^*, \varphi_2^*)$ , la jonction ne peut se développer dans la mesure où le nœud quadruple est déjà à l'équilibre. Cette situation correspond alors à la frontière entre les configurations pouvant former des jonctions et celles qui n'en formeront pas. La représentation graphique de cette frontière dans un plan  $(\varphi_1, \varphi_2)$  permet alors de délimiter ces régions. La figure III-19 représente l'influence de l'hydrogène sur ces lobes d'existence des jonctions dans le cas de systèmes conduisant à la formation de jonction de Lomer, glissile et de Hirth.



a) Jonction de Lomer



b) Jonction glissile



c) Jonction de Hirth

figure III-19. Domaines d'existence des jonctions a) Lomer, b) glissile et c) Hirth dans un repère  $(\varphi_1, \varphi_2)$  pour différents taux d'écrantage,  $S(T,c) = 0\%, 11\%, 22\%$  et  $33\%$  en l'absence de contrainte appliquée dans le modèle de tension de ligne de De Wit et Koehler.

Madec [16] a montré qu'un tel modèle élastique simplifié permet d'obtenir des informations fiables quant aux domaines d'existence des jonctions, en comparant de tels calculs aux résultats obtenus par simulation de la dynamique des dislocations discrètes (DDD). Il apparaît que le domaine d'existence des jonctions de Hirth est bien plus réduit que celui des jonctions de Lomer et glissile. Ceci traduit le fait que la force exercée par la jonction de Hirth est de l'ordre du double de celle exercée par chaque bras ( $F_j^x \propto \mu b_j^2$  avec  $|b_j| = \sqrt{2}|b_i|$ ). Le gain d'énergie est donc plus faible que dans le cas de la formation de jonctions de type Lomer ou glissile. L'introduction de l'écrantage permet de constater que l'hydrogène n'a pas ou peu d'influence sur les jonctions de type Lomer alors qu'il tend à modifier les domaines d'existence des jonctions glissile et de Hirth. L'écrantage des interactions de paires entre les composantes coin des dislocations élargit le domaine d'existence de la jonction glissile en le rendant plus symétrique vis à vis de  $\phi_1$ . En revanche, la présence d'hydrogène diminue significativement le domaine de formation de la jonction de Hirth.

### b) Longueur des jonctions

Nous allons nous focaliser sur l'étude de la longueur des jonctions en l'absence de contrainte. Ce paramètre est en effet fréquemment utilisé dans l'analyse comparative des différents modèles d'interactions entre dislocations. Nous limiterons ce calcul au cas de la formation d'une jonction symétrique,  $\phi_1 = \phi_2$ , entre deux segments de dislocations de même taille se coupant en leur milieu. La figure III-20 détaille l'évolution d'un bras de longueur initiale  $L$  et d'angle  $\phi$  lors de la formation d'une jonction. Les longueurs d'équilibre de la jonction et du bras sont respectivement notées  $L_j$  et  $L^*$ . L'angle du bras après formation de la jonction est noté  $\phi^*$ .

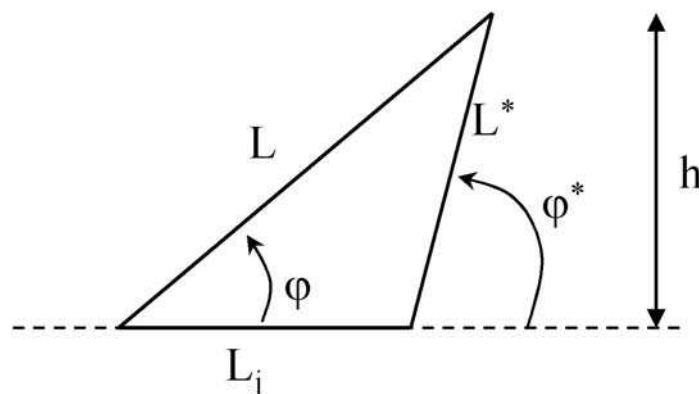


figure III-20. Evolution géométrique d'un bras ( $L$ ,  $\phi$ ) ancré à une distance  $h$  de l'axe de la jonction lors de la formation d'une jonction.  $L^*$ ,  $\phi^*$  sont respectivement la longueur et l'angle du bras à l'équilibre et  $L_j$  caractérise la demi-longueur de la jonction formée.

A partir des données angulaires définies figure III-20, nous tirons les égalités suivantes :

$$\begin{aligned} h &= L^* \sin \varphi^* = L \sin \varphi \\ L_j &= L \cos \varphi - L^* \cos \varphi^* . \end{aligned}$$

La longueur réduite de la jonction s'exprime alors comme suit :

$$\frac{L_j}{L} = \frac{\sin(\varphi^* - \varphi)}{\sin \varphi^*} . \quad (\text{III.50})$$

La détermination de l'angle critique  $\varphi^*$  permet alors d'évaluer l'évolution de la longueur réduite de la jonction en fonction de l'angle initial des dislocations par rapport à l'axe de la jonction et de l'écrantage induit par l'hydrogène. La figure III-21 illustre l'évolution de la longueur de la jonction, normalisée par la longueur initiale des segments de dislocation  $L$ , en fonction de l'angle d'intersection  $\varphi$  (dans le cas de la formation d'une jonction symétrique).

Ces résultats, bien qu'obtenus par un modèle simplifié, présentent un accord significatif avec ceux obtenus par la simulation de la dynamique des dislocations [17, 18]. L'introduction des effets d'écrantage a une faible incidence sur la longueur de la jonction formée dans le cas des jonctions de type Lomer et glissile. La différence observée entre ces deux jonctions (toutes deux de type  $\langle 110 \rangle$ ) réside dans la nature des jonctions formées, à savoir une jonction coin dans le cas de la Lomer alors que la glissile est de type mixte. En revanche, les effets de l'hydrogène sont nettement plus marqués dans le cas de la jonctions de Hirth. Pour un écrantage de 22%, la formation d'une telle jonction nécessite l'intersection entre deux dislocations formant un angle très faible par rapport à l'axe de la jonction,  $(-8,7^\circ; 8,7^\circ)$  dans le cas symétrique - figure III-21 c).



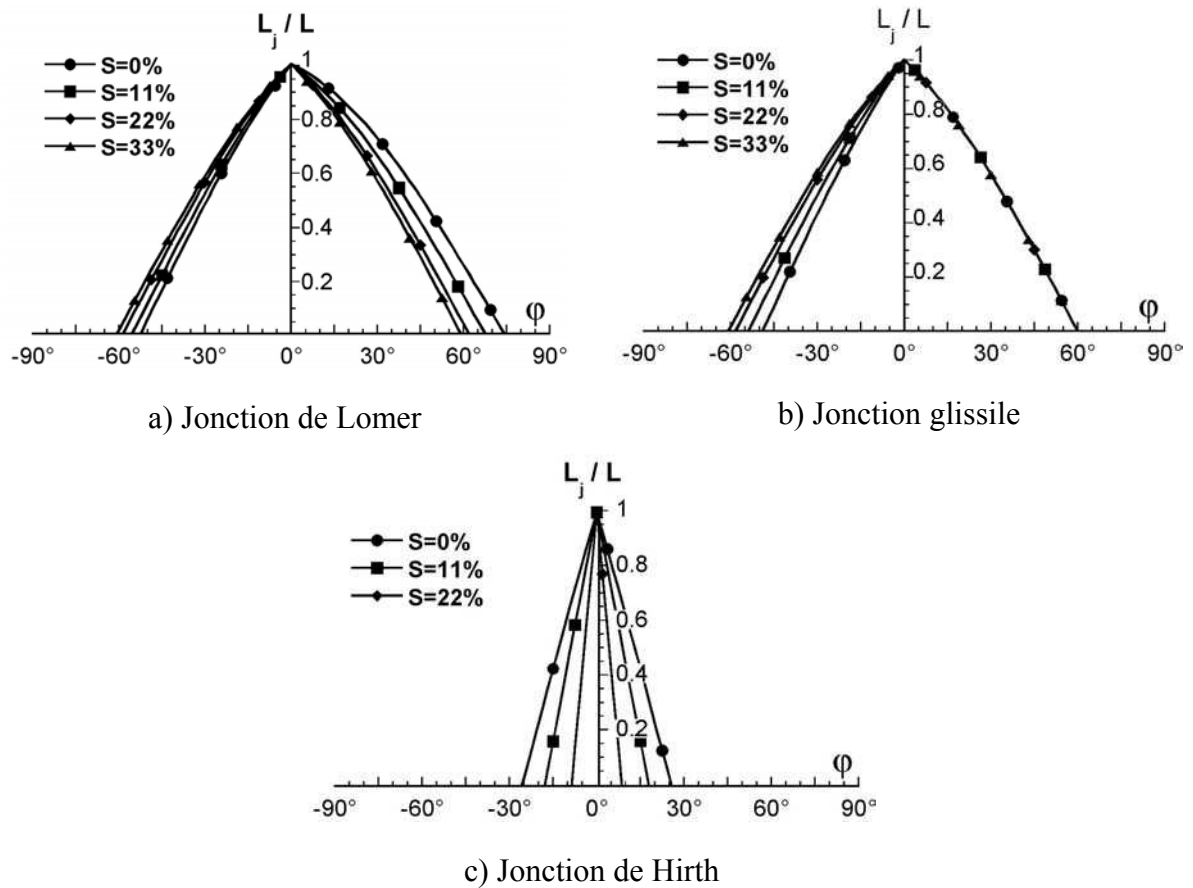


figure III-21. Variation de la longueur de jonction  $L_j$ , normalisée par la longueur initiale des dislocations  $L$ , en fonction de l'angle initial des dislocations par rapport à l'axe de jonction dans le cas symétrique ( $\phi_1 = \phi_2 = \phi$ ) pour différentes valeurs d'écrantage dans le cas a) d'une jonction de Lomer, b) d'une jonction glissile et c) d'une jonction de Hirth.

### III.2.2.2 Influence de l'hydrogène sur le comportement des jonctions sous contrainte

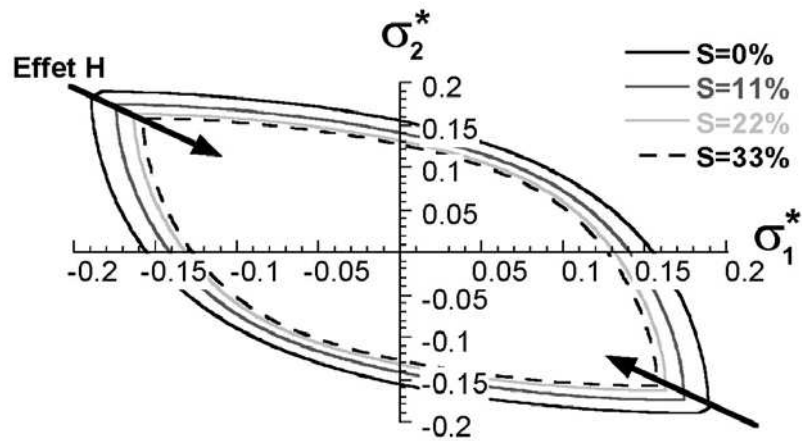
L'utilisation d'un modèle de tension de ligne permet, comme nous l'avons vu, d'obtenir des résultats concordant avec des modèles plus récents et complexes. L'influence de l'hydrogène sur le comportement des jonctions sous l'action d'une contrainte appliquée est donc étudié à partir du modèle classique de la tension de ligne [3, 4]. Ce travail s'appuie sur une étude effectuée par Dupuy et Fivel [19]. Nous analysons le comportement de jonctions symétriques pour lesquelles nous prendrons  $L_1 = L_2 = L$  et  $\phi_1 = \phi_2 = \phi$ .

La première étape de cette modélisation consiste à déterminer la configuration d'équilibre de la jonction en l'absence de contrainte appliquée. La cisssion résolue appliquée sur les dislocations est alors linéairement incrémentée jusqu'à la destruction de la jonction. A chaque étape, la position des nœuds triples est recalculée afin de satisfaire la condition d'équilibre (III.49). Ce modèle prend en considération deux mécanismes de destruction. Le premier correspond au cas où la position d'équilibre des deux nœuds est identique ce qui

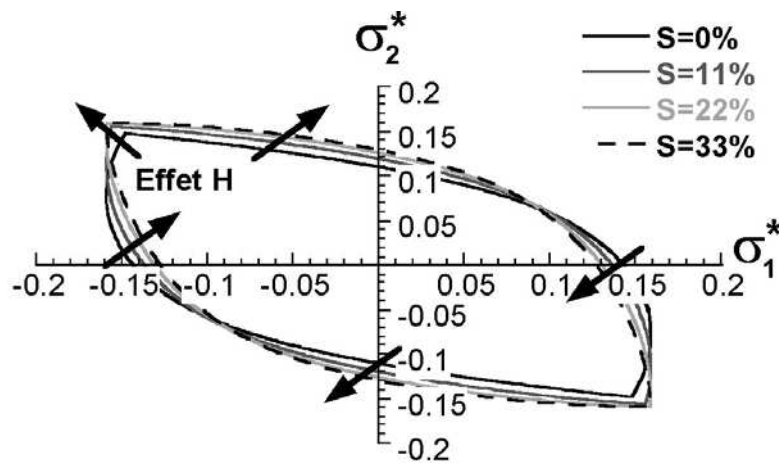
correspond à une jonction de longueur nulle. Le second mécanisme de destruction se traduit par l'impossibilité de trouver une position d'équilibre pour un des nœuds, il correspond au « dézippage » de la jonction, et a été proposé par Saada [15]. Les contraintes critiques sont alors représentées dans un plan  $(\sigma_1, \sigma_2)$  où  $\sigma_i$  ( $i = 1, 2$ ) représente la cisssion résolue agissant dans le système de glissement  $i$ . Une telle représentation graphique présente toutefois l'inconvénient de ne pas traduire le comportement de la jonction glissile qui nécessite la prise en compte d'une troisième contrainte  $\sigma_3$  dans la mesure où la jonction formée est mobile. Dans le cadre de cette étude, nous considèrerons que cette contrainte  $\sigma_3$  est nulle. Il ressort du travail de Dupuy et Fivel que la cisssion résolue critique  $\sigma_i$  ( $i = 1, 2$ ) peut s'écrire en fonction du terme adimensionnel  $\sigma_i^*$  comme suit :

$$\sigma_i = \frac{\mu b}{L \sin \varphi} \sigma_i^* \ln \left( \frac{R}{r_0} \right). \quad (\text{III.51})$$

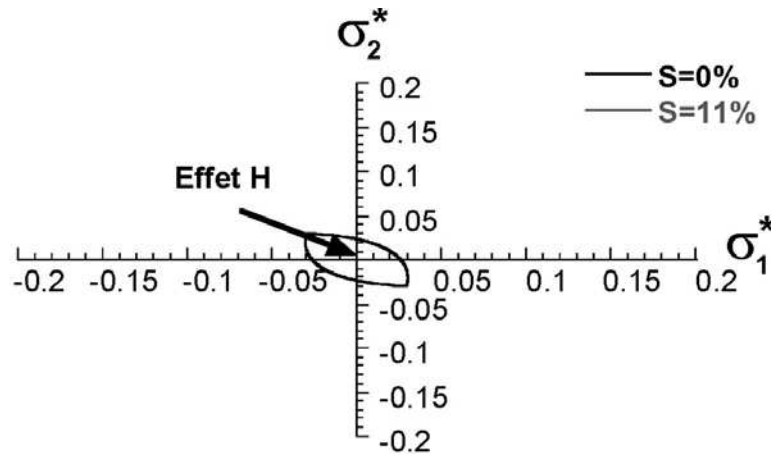
Une telle écriture permet ainsi de prendre en considération la dépendance angulaire de la cisssion résolue critique. Les surfaces critiques des trois jonctions sont représentées figure III-22 pour des indices d'écrantage variant de 0% à 33%. Cette figure met en lumière le fait que la contrainte nécessaire à la destruction d'une jonction dépend très nettement du type de jonction. En l'absence d'hydrogène, il est alors possible d'établir une hiérarchie entre ces trois jonctions : la jonction de Hirth étant la plus faible et la Lomer la plus forte. En l'absence d'hydrogène la jonction de Hirth contribue donc très minoritairement au mécanisme d'écrouissage, cette jonction étant très facilement détruite. En outre, il apparaît que l'hydrogène affaiblit considérablement cette jonction comme en atteste la figure III-22 c). Les deux autres jonctions considérées jouent quant à elles un rôle majeur dans le mécanisme d'écrouissage. L'analyse de l'influence de l'écrantage sur le comportement d'une jonction de Lomer est illustrée par la figure III-22 a). Il apparaît alors que l'hydrogène tend à affaiblir cette jonction. Cependant, l'effet observé demeure relativement faible. En revanche, la figure III-22 b) met en évidence le fait que la jonction glissile n'est pas ou peu affectée par l'hydrogène. Ainsi, pour de fortes valeurs de  $S(T, c)$ , la jonction glissile va jouer un rôle croissant dans le mécanisme d'écrouissage et ce au dépend des jonctions de Lomer dont la résistance diminue en présence d'hydrogène.



a) Jonction de Lomer



b) Jonction glissile



c) Jonction de Hirth

figure III-22. Représentation dans un plan normalisé ( $\sigma_1^*$ ,  $\sigma_2^*$ ) des contraintes critiques de destruction des jonctions a) de Lomer, b) glissile et c) de Hirth pour différents indices d'écrantage  $S(T,c) = 0\%$ ,  $11\%$ ,  $22\%$  et  $33\%$ .

**L'hydrogène affaiblit les jonctions de Lomer et de Hirth mais n'affecte pas ou peu la jonction glissile. En conséquence, la contribution de cette dernière dans le mécanisme d'écroutissage va croître à mesure que les effets d'écrantage augmentent et affaiblissent la jonction de Lomer**

### III.2.3 Comportement des dislocations partielles dissociées

Dans le paragraphe précédent, nous avons étudié l'influence de l'écrantage induit par l'hydrogène sur les interactions entre dislocation parfaites et notamment sur la formation de jonctions. Nous allons à présent analyser les conséquences de l'écrantage sur le comportement des dislocations partielles. Dans les matériaux CFC, les dislocations parfaites, de type  $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle$ , ont tendance à se dissocier en dislocations partielles, dites de Shockley, bordant un ruban de faute d'empilement. Ce mécanisme qui minimise l'énergie du système est illustré figure III-23. Les dislocations de Shockley, dont les vecteurs de Burgers sont contenus dans le plan de la faute, sont mobiles dans les plans denses de type  $\{111\}$ . Ces dislocations dissociées jouent un rôle important dans le glissement dévié et l'écroutissage. Nous allons tout d'abord étudier l'influence de l'écrantage des interactions de paires sur le mécanisme de glissement dévié. Dans un second temps, nous analyserons le comportement de la barrière de Lomer-Cottrell qui se forme quand deux dislocations dissociés de Shockley situés sur des plans  $\{111\}$  différents se rencontrent.

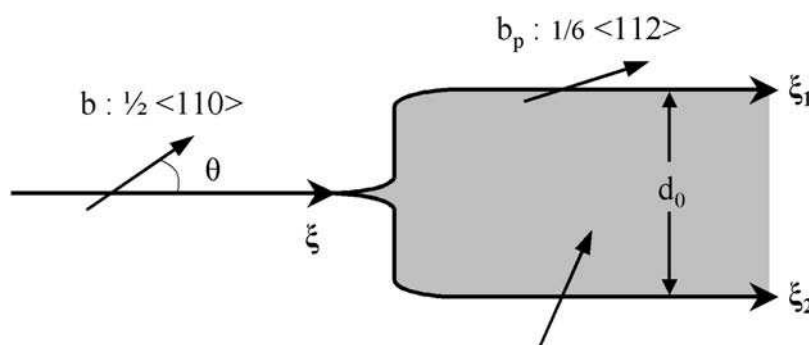


figure III-23. Dissociation d'une dislocation parfaite de vecteur de Burgers  $b$ , de vecteur ligne  $\xi$  et de caractère  $\theta$  en deux partielles ( $b_1, \xi_1$  et  $b_2, \xi_2$ ) reliées par une bande de faute de largeur  $d_0$ .

#### III.2.3.1 Influence de l'hydrogène sur la probabilité de glissement dévié

On parle de glissement dévié quand une dislocation quitte son plan de glissement pour passer dans un plan dense sécant. Les deux plans considérés doivent contenir la même direction de glissement  $\vec{b}$ . Ainsi, seules les dislocations vis peuvent être déviées. Dans les

matériaux CFC, le glissement dévié est inhibé par la dissociation. Les dislocations sont alors confinées dans leur plan de glissement. Pour que la dislocation dissociée puisse quitter son plan de glissement primitif, il faut que celle-ci se recombine. Le glissement dévié nécessite alors le franchissement d'une barrière énergétique qui sera proportionnelle à la largeur du ruban de faute. Avant d'étudier le mécanisme de glissement dévié, nous allons tout d'abord analyser l'influence de l'hydrogène sur le mécanisme de dissociation.

a) Influence sur la largeur de dissociation

La dissociation d'une dislocation de caractère  $\theta$ , décrite figure III-23, met en présence deux dislocations de Shockley dont les vecteurs de Burgers sont inclinés de  $\theta \pm \frac{\pi}{6}$  par rapport à leurs lignes respectives, séparées par un ruban de faute d'empilement. Chaque partielle est soumise à deux forces opposées : la répulsion élastique entre les partielles (variant en  $1/d_0$ ) d'une part et une force de rappel due à la faute d'empilement (indépendante de  $d_0$ ) d'autre part. Cette force attractive par unité de longueur de dislocation est égale à l'énergie de défaut d'empilement  $\Gamma$  ou EDE. A l'équilibre, ces deux forces sont égales et la condition d'équilibre est donnée par [9] :

$$\Gamma = \frac{F_R}{L} = -\frac{\partial(W_{12}/L)}{\partial R} = \frac{\mu}{2\pi d_0} \left[ (\vec{b}_1 \cdot \vec{\xi}_1)(\vec{b}_2 \cdot \vec{\xi}_2) + \frac{(\vec{b}_1 \otimes \vec{\xi}_1)(\vec{b}_2 \otimes \vec{\xi}_2)}{1-\nu} \right]. \quad (\text{III.52})$$

La distance d'équilibre entre les partielles de vecteur de Burgers  $b_p$  vaut :

$$d_0 = \frac{\mu b_p^2}{8\pi \Gamma} \frac{2-\nu(1+2\cos 2\theta)}{1-\nu}. \quad (\text{III.53})$$

La ségrégation de l'hydrogène sur les dislocations écrante les interactions élastiques entre dislocations coin. En présence d'hydrogène, la largeur du ruban de faute s'écrit alors :

$$d_0^H = \frac{\mu b_p^2}{8\pi \Gamma} \frac{(2-S(T,c)) - (\nu - S(T,c))(1+2\cos 2\theta)}{1-\nu} \quad (\text{III.54})$$

Considérons à présent que l'énergie de défaut d'empilement est insensible aux effets de l'hydrogène. La figure III-24 illustre l'évolution de la largeur du ruban de faute, normalisée par  $\mu b_p/\Gamma$  en fonction du caractère de la dislocation initiale  $\theta$ .

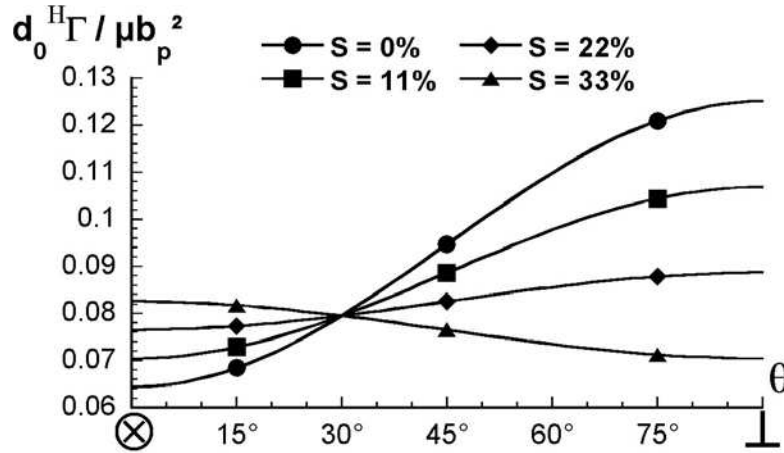


figure III-24. Effet de l'indice d'écrantage sur la largeur de dissociation normalisée par  $\mu b_p^2/\Gamma$ , avec  $b_p$  norme du vecteur de Burgers des partielles et  $\Gamma$  l'énergie de faute d'empilement, en fonction du caractère de la dislocation parfaite.

Il est alors possible de distinguer deux comportements bien distincts en fonction du caractère de la dislocation dissociée :

- Pour  $\theta < \frac{\pi}{6}$  : les composantes coin des partielles de vecteur de Burgers  $b_1$ ,  $b_2$  de caractère respectif  $\theta_1 = \theta - \frac{\pi}{6} < 0$  et  $\theta_2 = \theta + \frac{\pi}{6} > 0$  s'attirent. L'écrantage des interactions de paires entre composantes coin conduit donc à une diminution de cette contribution attractive. L'hydrogène renforce alors la répulsion des composantes vis. Les effets d'écrantage induisent un élargissement du ruban de faute.

- Pour  $\theta > \frac{\pi}{6}$  :  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont positifs, les composantes coin se repoussent. En l'absence d'hydrogène, cela se traduit par un élargissement significatif du ruban de faute. L'hydrogène tend à diminuer les interactions entre composantes coin, ce qui va induire une diminution de la répulsion entre composantes coin. Ainsi, l'écrantage induit par l'hydrogène se manifeste par une diminution relative de la distance d'équilibre entre partielles.

#### b) Analyse du glissement dévié

Examinons à présent les conséquences de cet écrantage sur le glissement dévié des dislocation vis. Les dislocations vis parfaites passent librement d'un plan de glissement à un autre. Ces mêmes dislocations, une fois dissociées forment un objet planaire et en conséquence ne peuvent plus changer de plan. Le glissement dévié d'une dislocation ainsi dissociée nécessite donc la recombinaison des deux partielles en une dislocation vis parfaite. Or, plus le ruban de faute est large plus la recombinaison des partielles est difficile. La largeur de dissociation d'une dislocation vis est donnée par l'expression (III.53) en prenant  $\theta = 0^\circ$ ,

soit  $\frac{\mu b_p^2}{8\pi \Gamma} \frac{2-3\nu}{1-\nu}$ . Il apparaît donc que pour les matériaux à faible énergie de défaut d'empilement le glissement dévié est défavorisé contrairement aux matériaux à forte EDE.

L'observation des lignes de glissement sur des matériaux chargés en hydrogène montre une planéité accrue ainsi qu'une plus forte localisation du glissement en présence d'hydrogène [20]. La raison généralement invoquée est une diminution de l'EDE induite par la présence d'hydrogène [21]. Ferreira *et al.* [22] estiment, par des mesures de rayons de courbure de nœuds triples en MET *in-situ*, qu'une pression d'hydrogène de 40 torr induit une diminution de l'EDE de 20% dans un acier inoxydable de type 310s. Cependant, dans ces analyses les auteurs négligent les effets élastiques de l'hydrogène sur les interactions entre dislocations partielles. Cet effet a été suggéré par Hirth et Lothe [9] et peut être déterminé à partir de l'expression (III.54) qui s'écrit alors :

$$d_0^H \Big|_{vis} = \frac{\mu b_p^2}{8\pi \Gamma} \frac{2-3\nu + S(T,c)}{1-\nu} \quad (III.55)$$

Pour une énergie de défaut d'empilement  $\Gamma$  fixée, la distance d'équilibre entre les partielles croît linéairement avec l'écrantage. Ce résultat, déjà souligné par Chateau [2], se traduit par une augmentation du travail de recombinaison en présence d'hydrogène et donc par une forte diminution de la probabilité de glissement dévié. A la température ambiante, dans le cas du nickel, une concentration atomique de 5% conduit à une augmentation de 50% du travail de recombinaison.

Bonneville et Escaig [23] ont montré que le glissement dévié intervient par constriction du ruban de faute en un point et non par recombinaison sur une longueur « infinie » des dislocations rigides comme nous venons de le voir. Le mécanisme de glissement dévié est donc tridimensionnel. La dislocation se développe dans le plan de glissement dévié à partir de la constriction par re-dissociation. Il existe dans la littérature de nombreux modèles qui décrivent le mécanisme de glissement dévié. Püschl [24] a récemment proposé une revue critique de ces modèles, dont les résultats sont compilés sur la figure III-25.

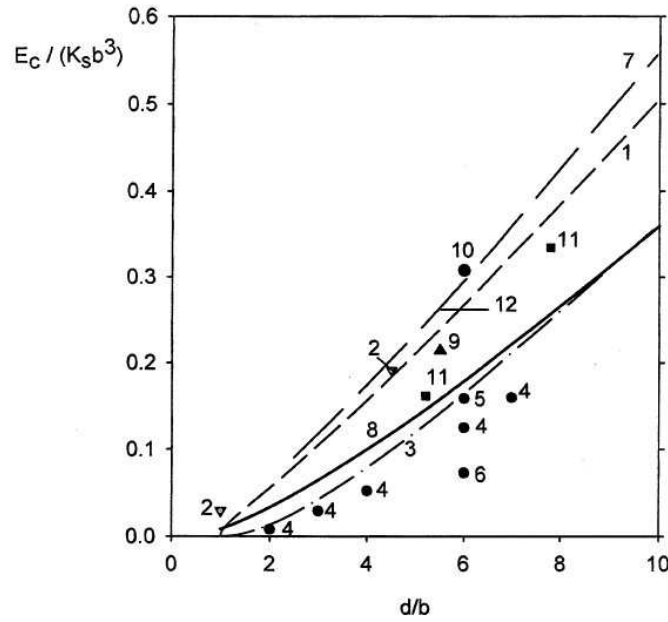


figure III-25. Variation de l'énergie de constriction  $E_c$  (normalisée par  $Ksb^3$  où  $K_s$  vaut  $\mu$  en élasticité isotrope) en fonction de la largeur du ruban de faute  $d$  normalisé par la norme du vecteur de Burgers  $b$ . Sont représentés les résultats obtenus par les modèles suivant : (1) Stroh; (2) Schoeck et Seeger; (3) Bonneville et Escaig; (4)-(6) Saada pour différentes longueurs de recombinaison; (7) Duesbery et al.; (8) Püschl et Schoeck; (9) Parthasarathy et Dimiduk pour  $Ni_3Al$ ; (10) Rasmussen pour  $Cu$ ; (11) Rao et al. pour  $Ni$ ; (12) représente la variation de l'énergie d'activation du glissement dévié. D'après Püschl [24].

Nous venons de voir que l'écrantage des interactions de paires entre composantes coin conduit à un élargissement du ruban de faute. D'après la figure III-25, cette augmentation va se traduire par un accroissement de l'énergie de constriction. Afin d'évaluer numériquement l'influence de l'hydrogène sur le travail de constriction, nous nous appuyons sur les résultats établis par Püschl [25]. Il estime que l'énergie de constriction d'une dislocation initialement vis s'écrit :

$$\frac{E_c}{K_s b^3} \approx 1,2 \cdot 10^{-2} \frac{d}{b} \ln \left( 2 \frac{d}{b} \right) \quad (\text{III.56})$$

où  $d$  est la distance d'équilibre entre les partielles,  $b$  le vecteur de Burgers de la parfaite et  $K_s$  correspond au terme pré-logarithmique de l'énergie de ligne d'une dislocation vis définie par la formule (III.22), à savoir  $K_s = \mu K(\theta)$  avec  $\theta = 0^\circ$ . En présence d'hydrogène, l'expression de la largeur du ruban de faute est donnée par la formule (III.55) et, compte tenu de l'expression (III.23),  $K_s = \mu$ . Les effets de l'hydrogène sur l'énergie de constriction sont représentés figure III-26. Il apparaît alors qu'un écrantage de 30% des interactions de paires



conduit à une augmentation de l'ordre de 40% de l'énergie de constriction. Cet effet élastique sur la recombinaison des partiels et donc sur la probabilité de glissement dévié est tout à fait significatif.

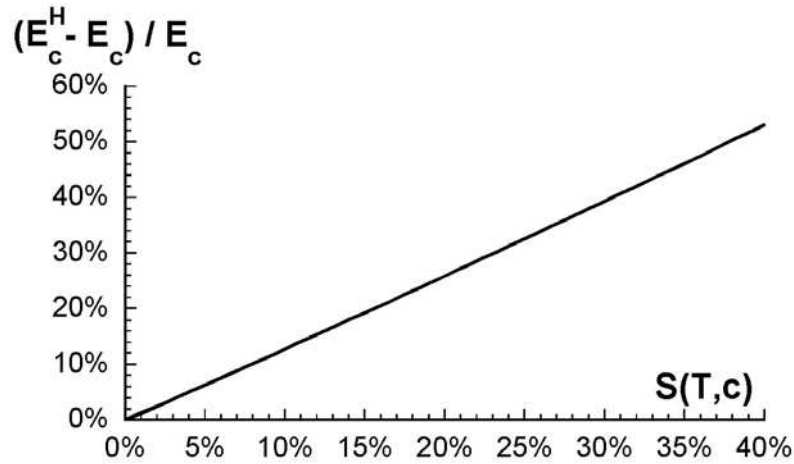


figure III-26. Evolution de l'augmentation de l'énergie de constriction induite par l'élargissement du ruban de faute en fonction de l'indice d'écrantage  $S(T,c)$ .

Expérimentalement, le rôle de l'hydrogène dans la diminution de la probabilité de glissement dévié est bien démontré. Cet effet qui est généralement attribué à une diminution de l'EDE induite par hydrogène peut s'expliquer par des effets purement élastiques. Nous reviendrons sur l'influence de l'hydrogène sur les mécanismes de dissociation dans le paragraphe III.2.3.3 à travers l'analyse du comportement d'un nœud triple étendu.

**Les effets élastiques induits par l'hydrogène contribuent à la diminution de la probabilité de glissement dévié.**

### III.2.3.2 Jonction de Lomer – Cottrell

Outre le glissement dévié, le mécanisme de dissociation est aussi étroitement lié à l'écrouissage des cristaux CFC. Afin d'expliquer l'écrouissage des monocristaux CFC, Cottrell [26], développant une idée de Lomer [27], a introduit la notion de barrière suffisamment stable et facile à former. Cette barrière, formée par la réunion de deux rubans de faute situés sur des plans sécants, constitue alors un objet particulièrement sessile.

Soit deux dislocations  $\Delta_1$  et  $\Delta_2$ , de vecteur de Burgers  $\frac{a}{2}[011]$  et  $\frac{a}{2}[10\bar{1}]$ , respectivement contenues dans les plans  $(11\bar{1})$  et  $(111)$  et parallèles à l'intersection  $I$   $[1\bar{1}0]$  de ces plans. Considérons que ces dislocations se décomposent chacune en deux partiels de type Shockley parallèles à  $I$  comme suit :

$$\Delta_2 : \frac{a}{2}[011] \rightarrow D'_1 : \frac{a}{6}[\bar{1}21] + D_1 : \frac{a}{6}[112],$$

$$\Delta_2 : \frac{a}{2}[10\bar{1}] \rightarrow D'_2 : \frac{a}{6}[2\bar{1}\bar{1}] + D_2 : \frac{a}{6}[11\bar{2}].$$

Dans cette configuration, illustrée figure III-27 a), les dislocations  $D_1$  et  $D_2$  de type coin sont les partielles les plus éloignées de l'intersection. Les partielles  $D'_1$  et  $D'_2$  s'attirent mutuellement et, lorsqu'elles se rejoignent sur I, elles se recombinent (figure III-27 b)) suivant la réaction :

$$D'_1 : \frac{a}{6}[\bar{1}21] + D'_2 : \frac{a}{6}[2\bar{1}\bar{1}] \rightarrow D : \frac{a}{6}[110].$$

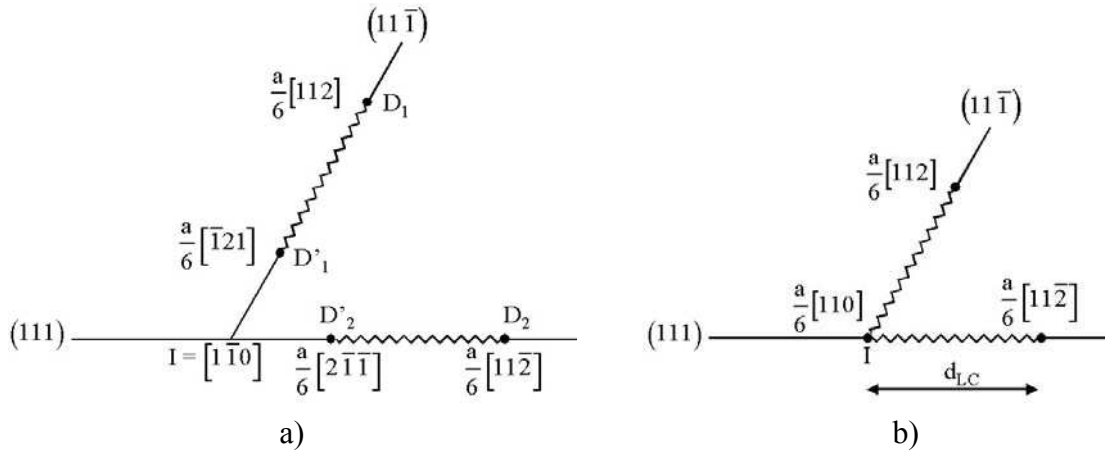


figure III-27. Formation d'une barrière de Lomer-Cottrell. a) Etat initial faisant suite à la dissociation des dislocations  $\Delta_1$  et  $\Delta_2$ . b) Formation de la barrière de Lomer-Cottrell d'après Friedel [3].

Les trois partielles en présence ( $D_1$ ,  $D_2$  et  $D$ ) sont toutes trois de type coin, le système ainsi formé est sessile, ce qui assure la stabilité de cette jonction. En l'absence de contrainte appliquée et en négligeant les interactions entre les partielles  $D_1$  et  $D_2$ , la largeur de la barrière est donnée à partir de l'expression (III.52) et s'écrit :

$$d_{LC} = \frac{\mu b^2}{18\pi \Gamma(1-\nu)} \quad (\text{III.57})$$

où  $b$  est le vecteur de Burgers de la dislocation parfaite. Sous l'action de l'écrantage des interactions de paires induit par l'hydrogène, cette relation devient :

$$d_{LC}^H = \frac{\mu b^2 (1 - S(T, c))}{18\pi \Gamma(1 - \nu)} \quad (\text{III.58})$$

La figure III-28 illustre l'évolution de la largeur de la barrière en fonction de l'indice d'écrantage  $S(T, c)$ .

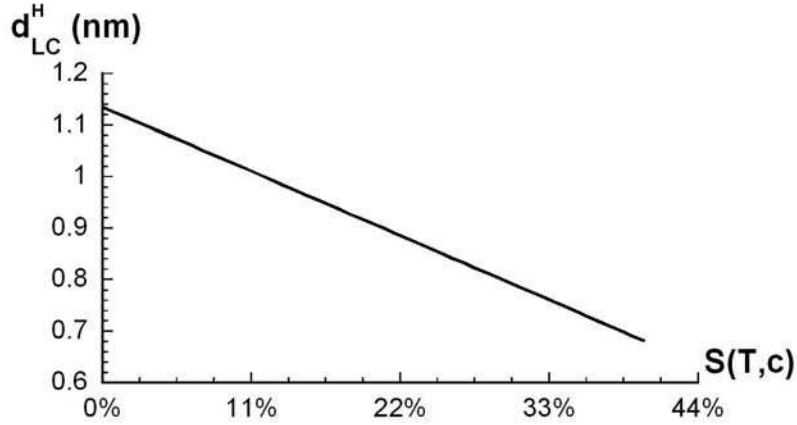


figure III-28. Variation de la largeur de la barrière en fonction de l'indice d'écrantage  $S(T, c)$ .

Il ressort de la figure III-28 que l'hydrogène diminue la largeur de la barrière de manière significative. Pour détruire une telle barrière, la contrainte appliquée doit induire une réaction de recombinaison des particules en une parfaite  $\frac{a}{2}[110]$  sur une distance  $\ell$  suffisante pour qu'elle puisse se développer sur son propre plan de glissement. Selon Stroh [28], le calcul du travail nécessaire à la destruction de la barrière s'écrit de manière simplifiée comme suit :

$$\frac{W_0}{\ell} \approx \frac{\mu b^2}{18\pi(1-\nu)} \left[ \ln \left( \frac{d'_{LC}}{b} \right) - 1 \right] \quad (\text{III.59})$$

où  $d'_{LC}$  est la largeur de la barrière en tenant compte de la contrainte appliquée. L'expression (III.58) est alors modifiée comme suit  $d'_{LC} = \frac{\mu b^2}{18\pi(1-\nu)[\Gamma + \sigma b]}$ . En présence d'hydrogène, nous obtenons alors :

$$\frac{W^H}{\ell} \approx \frac{\mu b^2 (1 - S(T, c))}{18\pi(1-\nu)} \left[ \ln \left( \frac{d_{LC}^{H'}}{b} \right) - 1 \right]. \quad (\text{III.60})$$

Nous avons tracé, figure III-29, la variation du travail de recombinaison en fonction de la concentration en hydrogène à la température ambiante sous l'action d'une contrainte de 10 MPa. Il apparaît que le travail de recombinaison est diminué de 33% pour une concentration de 10% d'hydrogène.

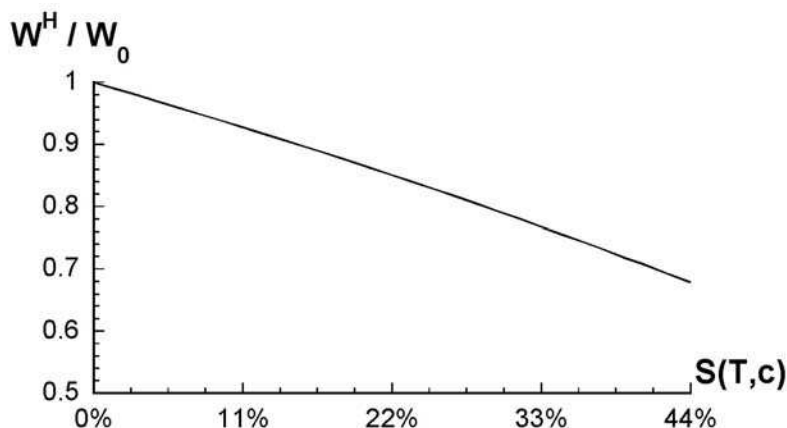


figure III-29. Evolution du travail de recombinaison en présence d'hydrogène normalisé par le travail en l'absence d'effet d'écrantage en fonction de l'écrantage induit par l'hydrogène.

Pour conclure l'étude de la barrière de Lomer-Cottrell, comparons cette jonction à la jonction de Lomer étudiée au paragraphe III.2.2. Il ressort de nombreuses études récentes [16, 18, 19, 29] que les barrières de Lomer-Cottrell présentent un comportement voisin de celui des jonctions de Lomer. L'évolution de longueur des jonctions en l'absence de contrainte en fonction de son caractère paraît être le paramètre de comparaison le plus pertinent entre ces modèles. En effet, Shenoy [29] a mis en évidence que les résultats obtenus par simulations du comportement d'une barrière de Lomer-Cottrell sont en accord quasi-parfait avec ceux obtenus par l'analyse d'une jonction de Lomer dans un modèle de tension de ligne élastique. Si le terme prépondérant est la longueur de la jonction, il ressort de notre étude que le comportement d'une jonction de Lomer et d'une barrière de Lomer-Cottrell va différer en présence d'hydrogène. En effet, l'écrantage des interactions de paires a une influence relativement faible sur l'évolution de la longueur d'une jonction de Lomer alors qu'il diminue considérablement la largeur de la barrière. En présence d'hydrogène, il nous semble donc important de distinguer le comportement de ces deux jonctions.

**L'hydrogène diminue significativement le travail de recombinaison nécessaire à la destruction de la barrière de Lomer-Cottrell.**

### III.2.3.3 Comportement d'un nœud triple

L'énergie de défaut d'empilement (EDE),  $\Gamma$ , apparaît comme une caractéristique fondamentale régissant la déformation plastique des alliages de structure CFC. L'EDE fixe en particulier les conditions d'apparition du glissement dévié. Expérimentalement, cette grandeur peut être obtenue par la mesure de la largeur du ruban de faute. Pour les matériaux à forte EDE, il s'avère périlleux de mesurer avec précision cette largeur, il est alors préférable d'estimer l'énergie de faute à partir des paramètres géométriques d'un nœud triple étendu. A partir des mesures des rayons de courbure de nœuds triples, de nombreux modèles permettent de remonter à la valeur de l'EDE, le plus couramment utilisé étant celui développé par Brown et Thölen [30, 31]. Ce modèle permet de déterminer numériquement la forme d'équilibre d'un nœud étendu symétrique en élasticité isotrope. Pour sa part, le modèle de Jøssang *et al.* [32] repose sur une décomposition en segment rigides et permet d'obtenir une définition analytique du bilan énergétique d'un nœud triple. La figure III-30 illustre les considérations géométriques inhérentes au nœud et en particulier celles induites par les modèles pré-cités.

Expérimentalement, le rôle de l'hydrogène dans la diminution de la probabilité de glissement dévié est bien démontré. Dans la partie IV.1, nous confirmons les effets de l'hydrogène sur la planéité du glissement par des essais sur des monocristaux orientés pour glissement simple. L'interprétation la plus fréquente de cet effet, à savoir la diminution de l'EDE induite par l'hydrogène, néglige donc l'influence de l'hydrogène sur les interactions élastiques entre dislocations. Or, nous avons vu au paragraphe III.2.3.1 que les effets d'écrantage contribuent à la diminution de la probabilité de glissement dévié. A notre connaissance, seules les observations au MET environnemental de Ferreira *et al.* [22] de l'influence de l'hydrogène sur le comportement de nœuds triples permettent de dissocier les effets élastiques des effets de cœur. Leurs mesures des paramètres régissant la géométrie d'un nœud triple sous vide puis sous pression partielle d'hydrogène sont effectuées sur un acier inoxydable 310s. La limite de leur approche réside dans le fait qu'ils interprètent leurs essais à la lumière du modèle de Brown et Thölen qui ne permet pas de prendre en compte les effets élastiques induits par l'hydrogène. Notre démarche est donc d'analyser leurs mesures grâce à un modèle de type Jøssang *et al.* prenant en compte la modification des interactions entre dislocations partielles assistée par l'hydrogène. Dans la première partie de ce paragraphe, nous utilisons le modèle de Jøssang *et al.* afin de déterminer le bilan énergétique d'un nœud triple en tenant compte des effets d'écrantage. A l'aide de cette méthode, nous analysons les résultats de Ferreira *et al.*.

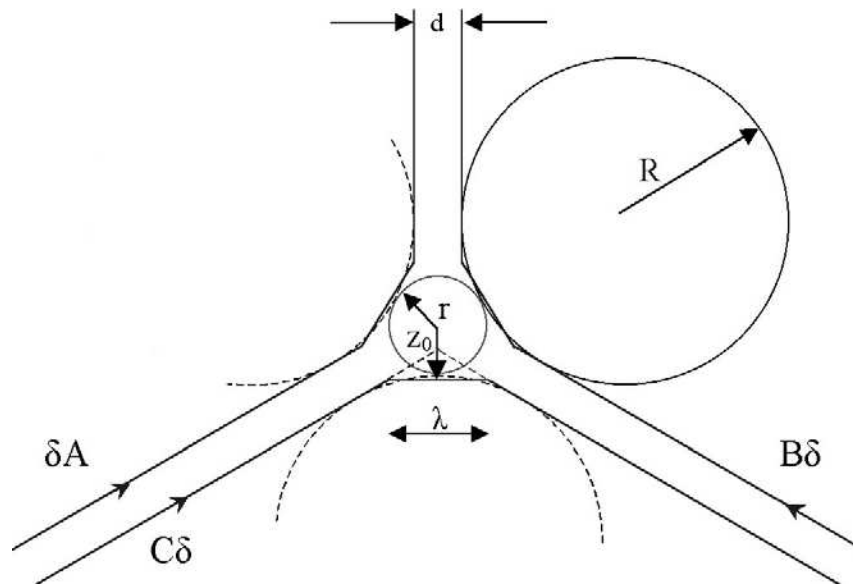


figure III-30. Définition des paramètres géométriques d'un nœud triple selon les modèles de Brown et Thölen [30, 31] et de Jøssang et al. [32]. Dans le modèle de Brown et Thölen la détermination de l'EDE repose sur la mesure des rayons de courbure externe  $R$  et interne  $r$ . La variable  $Z_0$  permet de relier la modélisation en segments rectilignes (dont les grandeurs caractéristiques sont  $\lambda$ ,  $Z_0$  et  $d$  à la mesure expérimentale du rayon de courbure  $r$ .

a) Modélisation de type Jøssang et al.

La démarche proposée par Jøssang *et al.* repose sur la détermination analytique du bilan énergétique d'un nœud entre son état contracté et son état étendu. Ce calcul est effectué à partir de la configuration représentée figure III-31 a). Une étape intermédiaire de ce calcul consiste à évaluer le bilan énergétique d'une dislocation de caractère  $\theta$  constitutive du nœud, représentée figure III-31 b). L'état contracté est défini par les branches I et II alors que la configuration étendue de cette dislocation fait intervenir les segments de dislocation 1, 2 et 3.

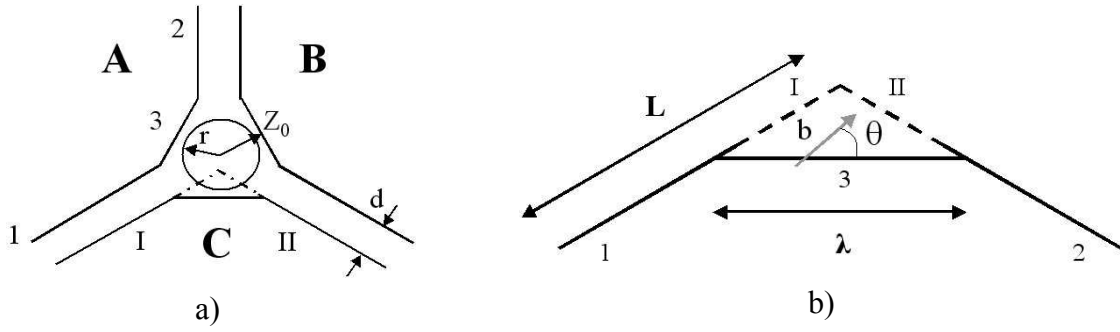


figure III-31 Représentation schématique d'un nœud triple de caractère  $\theta$  en segments rigides d'après Jøssang et al. [32]. a) Représentation d'un nœud triple en segments rectilignes. b) Décomposition d'une dislocation isolée du nœud triple. Les segments pointillés définissent le nœud dans son état « contracté ».

Ce calcul est très semblable à celui effectué lors de l'étude de la tension de ligne dans la partie III.1.4.2. Compte tenu des symétries, le bilan énergétique se décompose comme suit :

$$\Delta W = 2W_s(1) + W_s(2) + W_{\text{int}}(1,2) + 2W_{\text{int}}(1,3) - 2W_s(I) - W_{\text{int}}(I,II)$$

Pour une dislocation isolée C, figure III-31 b), le bilan énergétique en présence d'hydrogène est alors donné par l'expression (III.61) avec  $L \rightarrow \infty$

$$\Delta W_C^H = \frac{\mu b^2}{8\pi(1-\nu)} \left[ \begin{aligned} & \left\{ 2(2-\sqrt{3})[1-S(T,c) - (\nu-S(T,c))\cos^2\varphi] + (\nu-S(T,c))\cos 2\varphi \right\} \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \ln\left(\frac{\lambda}{r_0}\right) \\ & + [-4(1-S(T,c)) + (\nu-S(T,c))(1+2\cos^2\varphi)] \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \ln\left(\frac{2+\sqrt{3}}{4}\right) \end{aligned} \right] \quad (\text{III.61})$$

La détermination du bilan énergétique du nœud triple reprend la même démarche que pour la dislocation isolée mais en y intégrant l'énergie de faute d'empilement. Tous calculs faits, le bilan énergétique du nœud triple vaut :

$$\begin{aligned}
 \frac{\Delta W_{nœud}^H}{3\mu b^2} \frac{8\pi(1-\nu)}{=} & \left[ 1 - S(T, c) - (\nu - S(T, c)) \cos^2 \theta \right] \left[ \begin{aligned} & -\frac{d_0^H}{\sqrt{3}} \ln \left( \frac{2^3 u (w+u) (w + \sqrt{3}\lambda/2)}{\sqrt{3} (\sqrt{3}+1)^2 d_0^{H^6}} \right) \\ & + d_0^H \ln \left( \frac{2^2 (w+v) (w + \lambda + d_0^H/2)^2}{3\sqrt{3} d_0^{H^2} u} \right) \\ & + \lambda \ln \left( \frac{\sqrt{3} (w+v) \lambda^2}{e^2 u d_0^{H^2}} \right) \\ & + \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \ln \left( \frac{e^6 2^3 \sqrt{3} (\sqrt{3}-1)^{10} (w+u) d_0^{H^6}}{u (w + \sqrt{3}\lambda/2)^2 \lambda^4} \right) \end{aligned} \right] \quad (III.62) \\
 & + (\nu - S(T, c)) \cos 2\theta \left[ \begin{aligned} & \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \ln \left( \frac{\sqrt{3} (\sqrt{3}-1)^4 (w+u) (w + \sqrt{3}\lambda/2)}{u \lambda} \right) \\ & - \frac{d_0^H}{\sqrt{3}} \ln \left( \frac{2^3 u (w+u)}{\sqrt{3} (\sqrt{3}+1)^2 (w + \sqrt{3}\lambda/2)^2} \right) \end{aligned} \right] \\
 & + \left\{ \begin{aligned} & 2(2-\sqrt{3}) [1 - S(T, c) - (\nu - S(T, c)) \cos^2 \theta] \\ & + (\nu - S(T, c)) \cos 2\theta \end{aligned} \right\} \frac{\lambda}{\sqrt{3}} \ln \left( \frac{r_0}{d_0^H} \right) \\
 & + \left[ 2(1 - S(T, c)) - (\nu - S(T, c))(1 + 2 \cos 2\theta) \right] \frac{1}{4\sqrt{3}} \frac{\lambda^2}{d_0^H}
 \end{aligned}$$

où  $d_0^H$  est la largeur du ruban de faute, défini par l'équation (III.54),  $\theta$  le caractère du nœud,  $\lambda$  la longueur du segment 3, représenté figure III-31,  $r_0$  le rayon de coupure et les paramètres  $u$ ,  $v$  et  $w$  s'expriment comme suit :

$$\begin{aligned}
 u &= \frac{\sqrt{3}}{2} (\lambda + d_0^H), \\
 v &= \frac{1}{2} (\lambda - d_0^H), \\
 w &= \sqrt{\lambda^2 + \lambda d_0^H + d_0^{H^2}}.
 \end{aligned}$$

Le comportement du nœud, pour une valeur de l'EDE donnée peut être exprimé en fonction du paramètre géométrique réduit  $\Sigma_0$  :



$$\Sigma_0 = \sqrt{3} \frac{Z_0}{d} = \frac{\lambda}{2d} + 1. \quad (\text{III.63})$$

Pour nœud de cercle inscrit de rayon  $r$ , le paramètre  $Z_0$  (figure III-31) est relié aux mesures expérimentales par  $Z_0 = 1,1r$ .

A l'équilibre, la configuration des dislocations est stable, la variation de l'énergie d'un nœud en fonction de  $Z_0$  ou de  $\lambda$  est alors nulle. Pour un matériau donné, il est possible de tracer la variation du paramètre géométrique d'équilibre calculé,  $\Sigma_0$ , d'un nœud de caractère  $\theta$  en fonction de l'énergie de faute en minimisant l'équation (III.62). La mesure du rayon  $r$  permet de tracer l'évolution de  $\Sigma_0$  en fonction de l'EDE à partir des relations (III.54) et (III.63). L'intersection de ces deux courbes définit alors la valeur de l'énergie de défaut d'empilement correspondant à la configuration observée. Ce modèle présente l'inconvénient de ne dépendre que de la mesure du rayon de courbure interne,  $r$ .

b) Exploitation des résultats de Ferreira *et al.*

Les travaux présentés par Ferreira *et al.* [22] portent sur l'influence de l'hydrogène sur la dissociation d'un nœud dans le cas d'un acier inoxydable 310s ( $\mu = 73,1$  GPa,  $\nu = 0,305$  et  $b_p = 1,465$  Å). A partir de la mesure des rayons de courbures internes ( $r$ ) et externes ( $R$ ), ils analysent les effets d'une pression partielle d'hydrogène de 40 torr. Ferreira *et al.* [33] estiment qu'une telle pression correspond à une teneur de 0,9% atomique. Une telle concentration correspond à un taux d'écrantage de 8% dans le cas du 310s. Ils évaluent que l'hydrogène induit une diminution de l'ordre de 20% de l'EDE,  $\Gamma$ , en s'appuyant sur la formule donnée par Brown et Thölen [31] :

$$\begin{aligned} \frac{r\Gamma}{\mu b_p^2} = & 0,055 \left( \frac{2-\nu}{1-\nu} \right) - 0,06 \left( \frac{\nu}{(1-\nu)^2} \right) \cos 2\theta \\ & + \left[ 0,018 \left( \frac{2-\nu}{1-\nu} \right) + 0,036 \left( \frac{\nu}{1-\nu} \right) \cos 2\theta \right] \log \left( \frac{R}{r_0} \right) \end{aligned}$$

où  $\theta$  est le caractère du nœud,  $b_p$  le vecteur de Burgers de la dislocation partielle et  $r_0$  le rayon de coupure.

En l'absence d'hydrogène, l'évaluation de l'EDE est effectuée sur un nœud de caractère  $\theta = 8^\circ$ . Pour un tel nœud, Ferreira *et al.* effectuent deux mesures du rayon de courbure interne  $106 \pm 2$  Å et  $108 \pm 2$  Å. Nous avons tracé l'évolution des paramètres géométriques  $\Sigma_0$  calculés et expérimentaux d'un tel nœud en fonction de l'énergie de défaut d'empilement sur la figure en fonction de  $\Gamma$  d'un nœud de caractère mixte  $\theta = 8^\circ$ . Les résultats sont présentés sur la courbe la figure III-32.

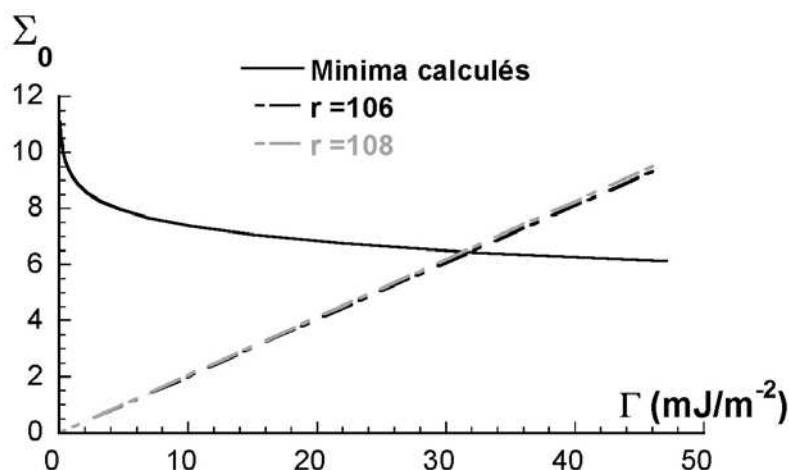


figure III-32. Variation des paramètres géométriques réduits  $\Sigma_0$  calculé et expérimental en fonction de l'énergie de faute d'un nœud de caractère  $\theta = 8^\circ$ .

Pour un tel nœud, le modèle de Jøssang *et al.* donne  $\Gamma = 31 \text{ mJ/m}^2$ . Nos résultats sont de l'ordre de 10% inférieurs à ceux obtenus par le modèle de Brown et Thölen. Nous avons cherché à estimer l'influence de l'hydrogène sur l'énergie de défaut d'empilement seule. Pour ce faire, nous avons repris les mesures des rayons de courbures de Ferreira *et al.* en présence de 40 torr d'hydrogène et avons cherché à évaluer la valeur de l'EDE en considérant  $S(T,c) = 0\%$  dans les formules (III.54), (III.62) et (III.63). Pour un nœud de caractère  $\theta = 19^\circ$ , on obtient une EDE de l'ordre de  $25 \text{ mJ/m}^2$  en négligeant tout effet d'écrantage. Nous évaluons donc que l'hydrogène induit une diminution de l'EDE de l'ordre de 19% en l'absence de tout effet élastique ce qui est conforme aux résultats obtenus par Ferreira *et al.*.

En connaissant le taux d'écrantage induit par une pression partielle de 40 torr d'hydrogène ( $S(T,c) = 8\%$ ), il est alors possible de calculer les configurations d'équilibre correspondant à un tel nœud. A partir des mesures du rayon de courbure interne du nœud dissocié, nous avons tracé la variation de  $\Sigma_0$ , formule (III.63), en prenant  $S(T,c) = 8\%$  dans l'expression (III.54). La figure III-33 illustre la variation du paramètre géométrique réduit, obtenu par ces deux calculs, en fonction de l'énergie de défaut d'empilement d'un nœud de caractère  $\theta = 19^\circ$ . Pour un tel nœud, Ferreira *et al.* effectuent deux mesures du rayon de courbure interne  $137 \pm 2 \text{ \AA}$  et  $140 \pm 2 \text{ \AA}$ .

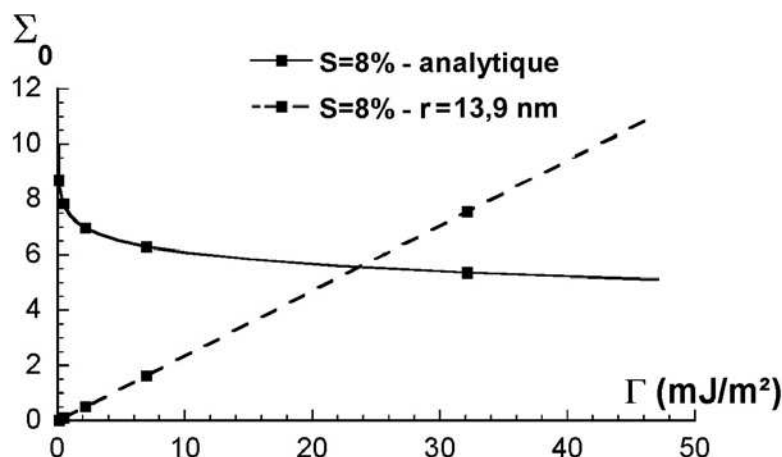


figure III-33. Evolution du paramètre géométrique réduit  $\Sigma_0$  obtenu par minimisation du bilan énergétique du nœud de caractère  $\theta = 19^\circ$  pour  $S(T,c) = 8\%$  en fonction de l'énergie de défaut d'empilement  $\Gamma$ . La variation de  $\Sigma_0$  correspondant à un rayon de courbure interne de 13,9 nm et à une largeur de dissociation tenant compte d'un effet d'écrantage de 8% est représentée par la courbe pointillée.

Pour un écrantage de 8% des interactions élastiques, nous obtenons une valeur de l'EDE de l'ordre de 23 mJ/m². Il apparaît donc que pour reproduire les résultats de Ferreira *et al.* il nous faut supposer une diminution de l'EDE de 26% contre 19% pour  $S(T,c) = 0\%$ . L'introduction de l'écrantage des interactions de paires dans le modèle de Jøssang *et al* met en évidence le fait que les effets élastiques amplifient l'influence de l'hydrogène sur la diminution de la probabilité de glissement dévié. Ce résultat va dans le sens d'une action conjuguée des effets de cœur et des effets élastiques. Une telle analyse permet de comprendre le fait que si l'on considère ces effets séparément il est impossible d'expliquer quantitativement l'augmentation de la planéité du glissement induite par l'hydrogène. En effet, dans le cas du calcul élastique présenté au paragraphe III.2.3.1, la quantité d'hydrogène nécessaire pour expliquer une baisse de la probabilité de glissement dévié est incompatible avec les teneurs mesurées notamment dans le cas du nickel. De même, Robertson [34] considère qu'une diminution de 20% de l'EDE ne peut expliquer à elle seule l'influence de l'hydrogène sur le glissement plan. L'augmentation de la planéité du glissement induite par l'hydrogène résulte donc d'une action couplées de ces deux effets.

## **Conclusion**

Dans le cadre de ce chapitre, nous nous sommes appuyés sur un certain nombre d'hypothèses physiques. En premier lieu, nous estimons que l'hydrogène occupe uniquement les sites octaédriques des matériaux CFC. Bien qu'il s'agisse de sites privilégiés, il est probable qu'une minorité d'atomes se placent dans les sites tétraédriques. L'occupation de

sites tétraédriques par l'hydrogène s'accompagne d'un effet de cisaillement. Cependant, il nous semble que l'effet élastique majoritaire provoqué par l'insertion d'atomes d'hydrogène reste la dilatation du réseau cristallin y compris dans le cas des sites tétraédriques. En outre, nous considérons que les dislocations sont en permanence épinglées par leur atmosphère d'hydrogène et ce quelque soit le comportement de la dislocation. Cette hypothèse est étayée par le fait qu'à la température ambiante, les dislocations traînent en permanence leur atmosphère de soluté. Elle est démontrée par les mesures présentées au chapitre II pour des vitesses de déformation « ordinaires » à la température ambiante. Enfin, nous supposons que seuls les effets élastiques affectent le comportement des dislocations. Ainsi, nous négligeons tout effet de « cœur » ce qui implique, par exemple, que nous considérons que l'hydrogène n'affecte pas l'énergie de défaut d'empilement des matériaux considérés. Notre objectif est donc d'évaluer la contribution des effets élastiques dans les mécanismes de la plasticité.

A partir de ces hypothèses, nous avons alors examiné l'influence de l'hydrogène sur le comportement des dislocations. Il en ressort que l'hydrogène ségrège dans le champ de contrainte hydrostatique et y relaxe les contraintes. L'hydrogène induit un écrantage des interactions de paires entre composantes coin. La prise en compte des effets élastiques de second ordre n'affecte l'expression générale de l'indice d'écrantage, définie par Château, qu'à travers le terme  $S_0$  qui correspond à la valeur maximale d'écrantage. Compte tenu du caractère général de cette expression, nous avons évalué le rôle de l'hydrogène, à travers cet indice  $S(T,c)$ , sur les mécanismes de la plasticité qui mettent en jeu des interactions élastiques entre composantes coin. La première étape passe par la détermination de l'influence de l'écrantage sur l'énergie de ligne et la tension de ligne d'une dislocation. L'étude de la tension de ligne présente un intérêt majeur dans la mesure où cette grandeur mesure la rigidité d'une dislocation. Cette propriété est donc fondamentale dans la compréhension des mécanismes de réactions entre dislocations. Pour ce faire, nous nous sommes appuyés sur des modèles classiques tels que le modèle de De Wit et Koehler. Nos calculs montrent alors qu'en abaissant l'énergie de ligne des parties coin, l'hydrogène diminue la tension de ligne des parties vis et augmente celle des parties coin. L'hydrogène doit donc tendre à rendre les boucles de dislocations moins anisotropes.

Nous avons alors examiné les conséquences de ces effets sur des mécanismes de la plasticité tels que la contrainte critique d'activation d'une source de Frank-Read, la force d'expansion d'une boucle circulaire, le comportement des jonctions ainsi que les mécanismes de glissement dévié. Dans le cas de l'étude de l'influence de l'écrantage sur le mécanisme de multiplication, nous montrons que l'hydrogène diminue significativement la contrainte d'activation d'une source de Frank-Read. De plus, nous avons évalué que la présence d'hydrogène facilite l'expansion isotrope d'une boucle de dislocation circulaire. Ces deux résultats illustrent ainsi le fait que l'hydrogène tend à favoriser le processus de multiplication et de propagation des boucles de dislocations. D'autre part, l'analyse de la stabilité des

jonctions entre dislocations parfaites en présence d'hydrogène met en lumière le fait que les effets d'écrantage modifient leurs caractéristiques. L'effet le plus notable de l'hydrogène est qu'à mesure que la teneur en hydrogène augmente la jonction de Lomer s'affaiblit, contrairement à la jonction glissile qui n'est pas ou peu affectée par les effets d'écrantage. Dans le cas des barrières de Lomer-Cottrell, les effets d'écrantage conduisent à une diminution de la longueur de la jonction ainsi formée ce qui se traduit alors par une diminution du travail de recombinaison nécessaire à sa destruction. Enfin, nous avons montré que les effets d'écrantage contribuent à la diminution de la probabilité de glissement dévié. Cependant, ces effets ne peuvent expliquer à eux seuls la planéité du glissement, au même titre que les effets de cœur comme le souligne Robertson. Il ressort de l'analyse des effets de l'hydrogène sur les paramètres géométriques d'un nœud triple dissocié que l'augmentation de la planéité du glissement induite par l'hydrogène résulte donc de l'action conjuguée d'effets élastiques et de cœur.

Dans tous les cas de figures étudiés, on note que les effets de l'hydrogène deviennent particulièrement significatifs à partir de  $S(T,c) \approx 10\%$ . Or, dans le cas du nickel, un tel taux d'écrantage correspond à une teneur en hydrogène supérieure à 1% atomique, ce qui correspond à 5 fois la concentration mesurée dans le cas de nos travaux (2000 ppm atomique). Ce point pose évidemment question en particulier dans le mesure où la manifestation macroscopique des effets de l'hydrogène sont perceptibles pour des teneurs relativement faibles par rapport à cette valeur de 11% comme nous l'avons vu dans le chapitre I. Nous reviendrons sur cette question dans le chapitre IV consacré à l'analyse du comportement en traction et en fatigue de monocristaux et de polycristaux de nickel et d'un alliage binaire Ni-16Cr hydrogénés. En revanche, il nous semble que ces calculs permettent d'envisager les effets de l'hydrogène sous un angle différent de celui généralement considéré. Alors qu'un grand nombre d'auteurs estiment que les effets imputables à l'hydrogène sont des effets dits de « cœur », l'exemple le plus frappant étant l'accroissement de la planéité du glissement qui est généralement attribuée à une diminution de l'énergie de défaut d'empilement, il nous semble important de ne pas négliger l'influence des effets élastiques.

### **Bilan - III**

#### Indice d'écrantage :

La prise en compte des effets élastiques de second ordre ne modifie pas l'expression générale de l'écrantage des interactions de paires définie par Chateau. Seule la valeur maximale d'écrantage est affectée,  $S_0 = 75\%$  (effets de dilatation seuls) contre  $(1+\nu)/2$ , soit 64% dans le cas du nickel (effets de second ordre).

$$S(T, c) = \frac{S_0}{1 + \beta \frac{T}{c}} \text{ avec } \beta = \frac{9(1-\nu)RV_M}{2EV^{*2}}$$

#### Expressions modifiées de l'énergie de ligne $E(\theta)$ et de la tension de ligne $\zeta(\theta)$ :

$$E^H(\theta) = \frac{\mu b^2}{4\pi} K^H(\theta) \ln\left(\frac{R}{r_0}\right) \text{ avec } K^H(\theta) = \frac{1 - S(T, c) - (\nu - S(T, c)) \cos^2 \theta}{1 - \nu}$$

$$\zeta^H(\theta) = \frac{\mu b^2}{4\pi(1-\nu)} \left[ 1 - 2\nu + S(T, c) + 3 \cos^2 \theta (\nu - S(T, c)) \right] \ln\left(\frac{R}{r_0}\right)$$

#### Processus de multiplication :

Les effets sur la tension de ligne affectent directement les mécanismes d'activation des sources de Frank-Read en diminuant la contrainte d'activation de ces sources. La force d'expansion isotrope d'une boucle est affectée par la ségrégation de l'hydrogène en proportion de  $S(T, c)$  :

$$\frac{F^H}{F} \approx 1 - 0,58 S(T, c)$$

#### Stabilité des jonctions :

La ségrégation de l'hydrogène conduit à un affaiblissement modéré des jonctions y compris pour des valeurs élevées de  $S(T, c)$ .

#### Influence de l'hydrogène sur la largeur de dissociation des dislocations :

L'écrantage des interactions de paires affecte la largeur de dissociation entre dislocations partielles :

$$d_0^H = \frac{\mu b_p^2}{8\pi \Gamma} \frac{(2 - S(T, c)) - (\nu - S(T, c))(1 + 2 \cos 2\theta)}{1 - \nu}$$

La diminution de la probabilité de glissement dévié induite par l'hydrogène résulte de l'action conjuguée d'effets élastiques et de cœur.

### **Bibliographie - III**

- [1] P. Sofronis et H. K. Birnbaum, "Mechanics of the hydrogen-dislocation-impurity interactions-I. increasing shear modulus", *Journal of Mechanics and Physics of Solids* (1995), 43, p. 49-90.
- [2] J. P. Chateau, D. Delafosse et T. Magnin, "Numerical simulations of hydrogen-dislocation interactions in FCC stainless steels. Part I: hydrogen-dislocation interactions in bulk crystals", *Acta Materialia* (2002), 50, p. 1507-1522.
- [3] J. Friedel, *Dislocations*, Pergamon Press (1964).
- [4] G. De Wit et J. S. Koehler, "Interaction of dislocations with an applied stress in anisotropic crystals", *Physical Review* (1959), 116, p. 1113-1120.
- [5] F. Larché et J. W. Cahn, "The interactions of composition and stress in crystalline alloys", *Acta Metallurgica* (1985), 33, p. 331-357.
- [6] P. Sofronis, "The influence of mobility of dissolved hydrogen on the elastic response of a metal", *Journal of Mechanics and Physics of Solids* (1995), 43, p. 1385-1407.
- [7] M. Peach et J. S. Koehler, "The forces exerted on dislocations and the stress fields produced by them", *Physical Review* (1950), 80, p. 436-439.
- [8] T. Jøssang, J. Lothe et K. Skylstad, "Explicit expressions for the energy of dislocation configuration made up of piecewise straight segments", *Acta Metallurgica* (1965), 13, p. 271-278.
- [9] J. P. Hirth et J. Lothe, *Theory of dislocations*, Krieger publishing company, Malabar, USA (1982).
- [10] J. P. Hirth, T. Jøssang et J. Lothe, "Dislocation energies and the concept of line tension", *Journal of Applied Physics* (1966), 37, p. 110-116.
- [11] F. C. Frank et W. T. Read, *Physical Review* (1950), 79, p. 722-723.
- [12] M. F. Ashby, "Results and consequences of a recalculation of the Frank-Read and Orowan stress", *Acta Metallurgica* (1966), 14, p. 679-681.
- [13] A. J. E. Foreman, "The bowing of a dislocation segment", *Philosophical Magazine A* (1967), 15, p. 1011-1021.
- [14] J. P. Hirth, "On dislocation interactions in the fcc lattice", *Journal of Applied Physics* (1960), 32, p. 700-706.
- [15] G. Saada, "Sur le durcissement dû à la recombinaison des dislocations", *Acta Metallurgica* (1960), 8, p. 841-847.
- [16] R. Madec, "Des interactions entre dislocations à la plasticité du monocristal CFC; étude par dynamique des dislocations", *Thèse Université Paris XI* (2001).
- [17] R. Madec, B. Devincere et L. P. Kubin, "New line model for optimized dynamics simulations" (2001), édité par L. P. Kubin, R. L. Selinger, J. L. Bassani et K. Cho, *Material Research Society Symposium Proceedings*, 653, p. Z1.8 .1-6.
- [18] D. Weygand, L. H. Friedman, E. Van der Giessen et A. Needleman, "Aspects of boundary-value problem solutions with three-dimensional dislocation dynamics",

- Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering A (2002), 10, p. 437-468.
- [19] L. Dupuy et M. C. Fivel, "A study of dislocation junctions in FCC metals by an orientation dependent line tension model", *Acta Materialia* (2002), 50, p. 4873-4885.
- [20] D. P. Abraham et C. J. Altstetter, "Hydrogen-enhanced localization of plasticity in an austenitic stainless steel", *Metallurgical and Materials transactions A* (1995), 26A, p. 2859-2871.
- [21] A. H. Windle et G. C. Smith, "The effect of hydrogen on the plastic deformation of nickel single cristal", *Metal Science Journal* (1968), 2, p. 187-191.
- [22] P. J. Ferreira, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "Influence of hydrogen on the stacking-fault energy of an austenitic stainless steel", *Materials Science Forum* (1996), 207-209, p. 93-96.
- [23] J. Bonneville et B. Escaig, "Cross-slipping process and the stress-orientation dependence in pure copper", *Acta Metallurgica* (1979), 27, p. 1477-1486.
- [24] W. Püschl, "Models for dislocation cross-slip in close-packed crystal structures: a critical review", *Progress in Materials Science* (2002), 47, p. 415-461.
- [25] W. Püschl et G. Schoeck, "Calculation of cross-slip parameters in f.c.c. crystals", *Materials Science and Engineering A* (1993), A164, p. 286-289.
- [26] A. H. Cottrell, "The formation of immobile dislocations during slip", *Philosophical Magazine A* (1952), 43, p. 645-647.
- [27] W. M. Lomer, "A dislocation reaction in the face-centred cubic lattice", *Philosophical Magazine A* (1951), 42, p. 1327-1331.
- [28] A. N. Stroh, "The strength of Lomer-Cottrell Sessiles Dislocations", *Philosophical Magazine A* (1956), 1, p. 489-502.
- [29] V. B. Shenoy, R. V. Kukta et R. Phillips, "Mesoscopic analysis of structure and strength of dislocation junctions in fcc metals", *Physical Review Letters* (2000), 84, p. 1491-1494.
- [30] L. M. Brown, "The self-stress of dislocations and the shape of extended nodes", *Philosophical Magazine A* (1964), 10, p. 441-466.
- [31] L. M. Brown et A. R. Thölén, "Shape of three-fold extended nodes", *Discussions of the Faraday Society* (1964), 38, p. 35-41.
- [32] T. Jøssang, M. J. Stowell, J. P. Hirth et J. Lothe, "On the determination of the stacking fault energies from extended dislocation node measurements", *Acta Metallurgica* (1965), 13, p. 279-291.
- [33] P. J. Ferreira, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "Hydrogen effects on the interaction between dislocations", *Acta Materialia* (1998), 46, p. 1749-1757.
- [34] I. M. Robertson, "The effect of hydrogen on dislocation dynamics", *Engineering Fracture Mechanics* (1999), 64, p. 649-673.





**Chapitre IV. :**  
**MANIFESTATIONS MACROSCOPIQUES DES EFFETS DE  
L'HYDROGENE SUR LA CONTRAINTE D'ECOULEMENT**



## **Introduction**

Dans le premier chapitre de ce mémoire, nous avons proposé une revue synthétique des manifestations des effets de l'hydrogène aux échelles microscopique et macroscopique. Il ressort d'un grand nombre d'observations effectuées au MET environnemental [1, 2] que l'hydrogène écrante les interactions entre dislocations. A l'échelle macroscopique, nous avons rappelé les effets de l'hydrogène sur le comportement de matériaux tels que les aciers austénitiques [3-5] ou le nickel [6, 7]. Il apparaît ainsi que la détermination *a priori* du signe de la contribution de l'hydrogène à la contrainte d'écoulement n'est pas triviale. Nous avons tout d'abord examiné les interactions hydrogène-plasticité à l'aune des effets de vieillissement qui permettent de caractériser macroscopiquement les interactions dynamiques entre les dislocations mobiles et soluté. Cette étude, présentée au chapitre II, nous a permis de quantifier la contrainte d'épinglage des dislocations par leur atmosphère d'hydrogène, qui correspond à une contribution positive à la contrainte d'écoulement lors d'essais de traction à la température ambiante pour des vitesses de déformation ordinaires. Dans le cadre du chapitre III, nous avons modélisé les effets de l'hydrogène sur les mécanismes de la plasticité. Pour ce faire, nous avons rappelé que les effets d'écrantage induits par l'hydrogène affectent tous les mécanismes mettant en jeu des interactions élastiques entre composantes coin. Nous avons alors déterminé les effets de cet écrantage sur des paramètres tels que l'énergie et la tension de ligne des dislocations et, en conséquence l'influence de l'hydrogène sur un certain nombre de mécanismes élémentaires de la plasticité, à savoir l'activation d'une source de Frank-Read, la force des jonctions, les mécanismes de dissociation.

Dans ce chapitre, nous examinons les effets de l'hydrogène sur le comportement macroscopique de matériaux modèles, à savoir du nickel et un alliage binaire à base de nickel contenant 16% en masse de chrome. Pour cette étude, nous analysons en particulier l'influence de l'hydrogène en traction mais aussi en fatigue sur des monocristaux orientés pour glissement simple. Le choix de tels monocristaux permet en effet une identification directe des mécanismes contrôlant la plasticité de ces matériaux. Dans un second temps, nous étudions le comportement en traction de polycristaux de nickel et de l'alliage Ni-16Cr avec ou sans hydrogène. Ce chapitre est scindé en trois paragraphes. Le premier est consacré à l'influence de l'hydrogène sur le comportement de monocristaux orientés pour glissement simple. Dans un deuxième temps, nous décrivons les effets de l'hydrogène sur les courbes contrainte-déformation d'éprouvettes polycristallines puis, dans un troisième paragraphe, nous discutons de ces manifestations macroscopiques à l'aune des résultats présentés aux chapitres II et III.

### IV.1 Etude des effets de l'hydrogène sur le comportement de monocristaux orientés pour glissement simple

Les monocristaux utilisés lors de cette étude sont élaborés au département Métaux de Haute Pureté de l'Ecole des Mines de St Etienne. L'analyse chimique effectuée sur les monocristaux indique des taux de C, S, O et N inférieurs à 10 ppm massique. Les éprouvettes, dont les caractéristiques géométriques sont présentées sur la figure IV-1, sont découpées par électroérosion.

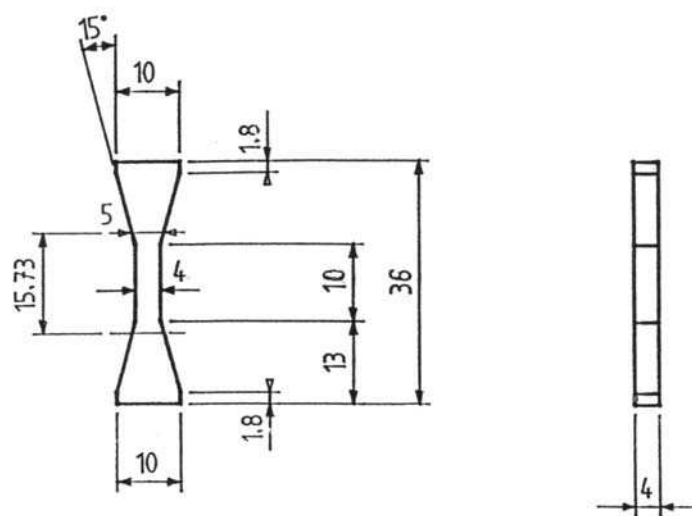


figure IV-1. Géométrie des éprouvettes prismatiques monocristallines découpées par électroérosion.

La grande majorité des essais est réalisée sur des éprouvettes présentant un axe de sollicitation parallèle à la direction  $[153]$  afin d'évaluer les effets de l'hydrogène sur des monocristaux orientés pour glissement simple. Pour une sollicitation suivant la direction  $[153]$ , le facteur de Schmid du système de glissement  $(111)[110]$  est très proche de 0,5 (0,49) alors que celui du deuxième système de glissement activable est beaucoup plus faible (0,42). Le choix de cette orientation cristalline nous place alors dans des conditions dites de « glissement plan ». La figure IV-2 montre l'orientation du système de glissement activé par rapport à l'axe de sollicitation de l'éprouvette. La vérification de l'orientation des éprouvettes est effectuée à l'aide de clichés de Laüé en RX.

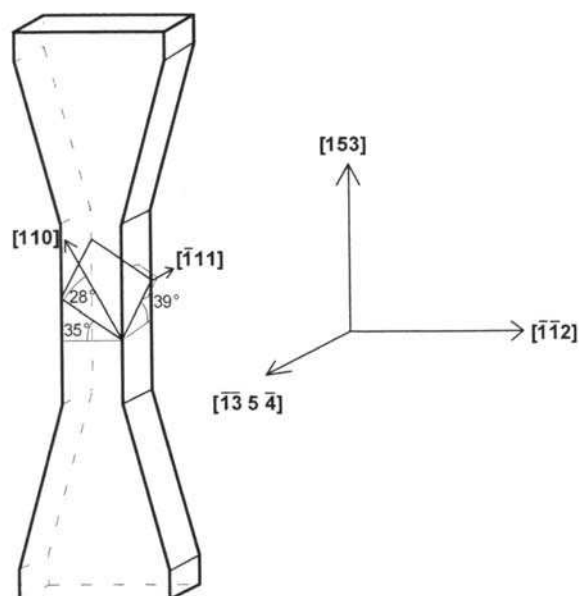


figure IV-2. Représentation schématique de l'orientation cristalline des éprouvettes monocristallines utilisées lors des essais de fatigue ainsi que du système de glissement activé.

Nous nous sommes intéressés aux effets de l'hydrogène sur des monocristaux de nickel et d'un alliage binaire contenant 16% massique de chrome. Le choix de la composition de cet alliage est guidé par la volonté de se rapprocher de matériaux industriels, en particulier de l'alliage 600. Les principaux constituants de cet alliage à base de nickel sont le chrome et le fer dont les teneurs en masse varient respectivement entre 15 et 17% et entre 8 et 10%. Nous analysons les effets de l'hydrogène sur le comportement de monocristaux soumis à deux types de sollicitations. Tout d'abord, nous analysons l'influence de l'hydrogène sur le comportement en fatigue oligocyclique de monocristaux de nickel orientés pour glissement simple. La seconde partie de ce paragraphe est consacrée aux effets de l'hydrogène sur le comportement en traction de monocristaux de nickel et de Ni-16Cr.

#### IV.1.1 Fatigue oligocyclique

Nous analysons tout d'abord les manifestations des effets de l'hydrogène en sollicitation cyclique sur des monocristaux de nickel orientés pour glissement simple. Ces essais présentent la particularité de produire des microstructures stables et donc une contrainte d'écoulement reproductible, notamment lorsqu'il y a formation de Bandes de Glissement Persistantes (BGP). De tels essais permettent alors de comparer les effets induits par l'hydrogène sur des microstructures bien définies et maîtrisées. Nous rappellerons tout

d'abord succinctement les mécanismes microstructuraux qui régissent la fatigue oligocyclique puis nous caractériserons les effets induits par l'hydrogène.

#### IV.1.1.1 Localisation de la déformation plastique en fatigue oligocyclique

En fatigue, la structure de dislocations d'un matériau CFC est conditionnée par deux paramètres. Ces paramètres sont l'Energie de Défaut d'Empilement (EDE) et l'amplitude de déformation plastique imposée. Pour des amplitudes de déformation plastique comprises entre  $10^{-4}$  et  $10^{-2}$ , les matériaux à faible EDE produisent des bandes intenses de glissement, contrairement aux autres qui forment des BGP. Les travaux de Mughrabi [8] sur des monocristaux de cuivre (dont l'EDE est de l'ordre de  $45 \text{ mJ.m}^{-2}$  [9]) montrent que la contrainte à saturation présente une évolution en trois stades A, B et C. Dans les gammes A et C, la contrainte à saturation croît avec l'amplitude de cisaillement  $\gamma_p$  alors qu'elle présente la particularité d'être constante au stade B. La figure IV-3 illustre cette évolution en trois stades dans le cas de monocristaux de nickel orientés pour glissement simple, l'EDE du nickel valant environ  $100 \text{ mJ.m}^{-2}$  [10]. Le plateau, qui s'étend pour le nickel de  $\gamma_p = 4 \times 10^{-4}$  à  $\gamma_p = 8 \times 10^{-3}$ , est dû à la localisation de la déformation dans les BGP.

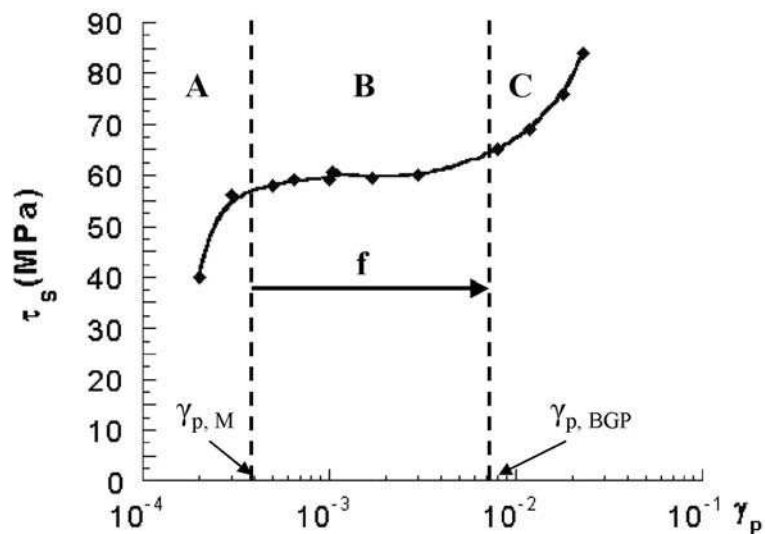


figure IV-3. Courbe d'écrouissage cyclique à saturation en trois stades (A, B, C) de monocristaux de nickel. Dans la gamme B, délimitée par les déformations plastiques  $\gamma_{p,I}$  des phases I (avec  $I = M$  pour Matrice et BGP pour Bandes de Glissement Persistantes),  $f$  représente la fraction volumique occupée par les BGP. D'après Magnin [11]

La partie A de la courbe d'écrouissage cyclique correspond à la formation d'une structure de veines dans laquelle une forte densité de dislocation coin est stockée sous forme de « paquets » [8]. La figure IV-4 a) schématise cette structure dite matrice au sein de laquelle les veines denses délimitent des canaux très pauvres en dislocations. Dans la matrice, veines

et canaux occupent des fractions volumiques sensiblement égales. Le domaine B va voir se former une seconde structure caractérisée par la figure IV-4 b). Cette structure de BGP est constituée de murs allongés dans la direction coin délimitant des canaux dans lesquels la densité des vis est nettement plus forte que dans la matrice. Dans cette structure, les murs occupent environ 10% du volume ce qui explique la grande déformabilité des BGP. Au cours du stade B, il apparaît en outre que le matériau se comporte comme un composite formé des BGP et de la matrice. Le matériau s'adapte alors à la déformation plastique imposée en ajustant la fraction volumique de BGP,  $f$ . Winter [12] puis Finney et Laird [13] ont ainsi établi une analogie avec le comportement d'un matériau à deux phases, l'une « dure », la matrice qui ne se déforme pratiquement pas ( $\gamma_{p,M} = 4 \times 10^{-4}$ ), et l'autre supportant quasiment toute la déformation plastique, les BGP ( $\gamma_{p,BGP} = 8 \times 10^{-3}$ ). Dans cette région, la déformation plastique est définie comme suit :

$$\gamma_p = \gamma_{p,BGP} + (1-f)\gamma_{p,M} \quad (IV.1)$$

En conséquence, la déformation plastique passe de  $\gamma_p = \gamma_{p,M}$ , à la transition entre les régions A et B, à  $\gamma_p = \gamma_{p,BGP}$  pour  $f = 1$ . Dans les BGP, le mécanisme de déformation est gouverné par un équilibre dynamique entre multiplication des boucles à partir des murs et annihilation des parties vis des boucles par glissement dévié. Ce processus peut alors être analysé comme suit :

- émission de boucles de dislocations à partir des murs,
- absorption des parties coins des boucles dans les murs opposés alors que les parties vis accommodent la déformation par un mouvement de va-et-vient dans les canaux,
- annihilation des parties vis par glissement dévié.

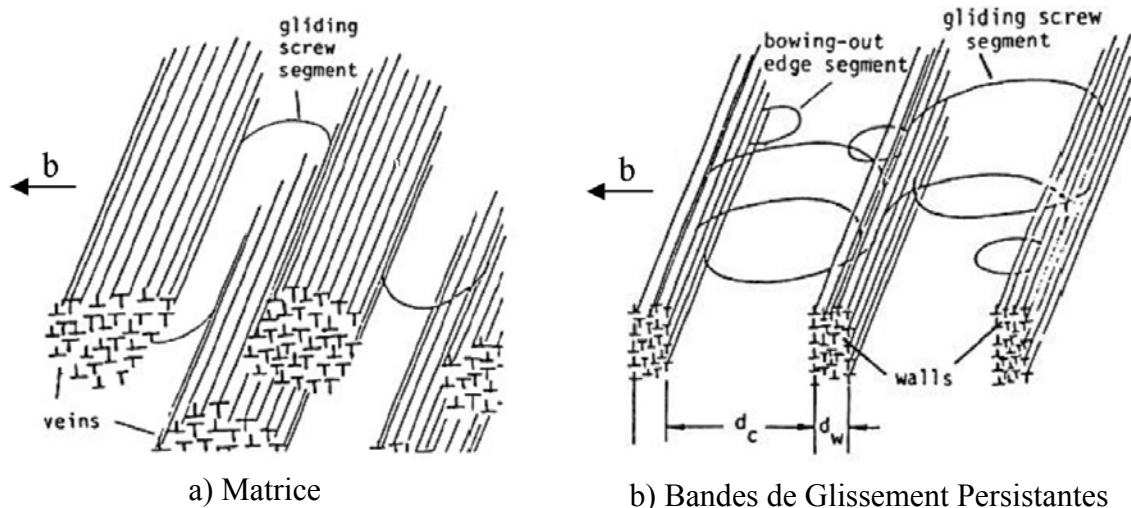


figure IV-4. Représentation schématique des structures de dislocations a) de la Matrice et b) des BGP. D'après Mughrabi [14].



#### IV.1.1.2 Caractérisation des interactions hydrogène-dislocations en fatigue

Comme nous venons de le voir, l'intérêt de la fatigue oligocyclique réside dans la maîtrise de la microstructure de dislocations tout particulièrement dans le domaine des BGP. Notre objectif est alors de comparer les courbes d'écrouissage cyclique de monocristaux hydrogénés orientés pour glissement simple avec celle de monocristaux non chargés. Dans ce paragraphe, nous apportons un éclairage nouveau aux résultats présentés par Magnin *et al.* [15] et repris par Delafosse *et al.* [16].

Les conditions de chargement employées lors de cette étude sont identiques à celles décrites dans le paragraphe II.2.1.2. Après un séjour de 48 heures à 400°C et sous une pression de 150 bars d'hydrogène, la teneur en hydrogène est de 1300 ppm atomique. Ces essais sont effectués à la température ambiante et à une vitesse de déformation de  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . La figure IV-5 représente les courbes de consolidation cyclique de monocristaux purs et chargés en hydrogène pour une amplitude de déformation plastique imposée de  $2 \times 10^{-4}$ . Il ressort de cette courbe les deux points suivants :

- La présence d'hydrogène se traduit par une augmentation sensible de la contrainte cyclique initiale. Ce durcissement initial est de l'ordre de 10 MPa. Nous attribuons cet effet au traînage des atmosphères d'hydrogène dans la mesure où ces essais sont réalisés à la température ambiante. En outre, cette valeur est à rapprocher de la valeur de la contrainte maximale d'épinglage déterminée au chapitre II, à savoir environ 20 MPa pour une teneur en hydrogène de 1900 ppm atomique.

- Le stade de saturation est atteint plus rapidement dans le cas de l'échantillon hydrogéné. De plus, le niveau de la contrainte à saturation atteint est notablement diminué par l'hydrogène. Cet essai, effectué à une déformation plastique imposée de  $2 \times 10^{-4}$ , se situe dans le domaine A où seule est présente la structure de type Matrice décrite schématiquement par la figure IV-4 a). Cette structure se caractérise par la présence de veines denses constituées de multipôles coins. Dans la mesure où l'hydrogène ségrège dans le champ hydrostatique des dislocations coin, nous considérons que les veines constituent des zones privilégiées de piégeage de l'hydrogène. De fait, nous estimons que dans les veines la concentration locale en hydrogène va être nettement plus élevée que la teneur globale. Ainsi, nous attribuons la différence de comportement observée à l'abaissement de l'énergie de ligne des dislocations coin assisté par l'hydrogène (paragraphe III.1.3). En ségrégeant sur les multipôles coins, l'hydrogène tend donc à stabiliser la structure de veine plus rapidement et pour une contrainte plus faible.

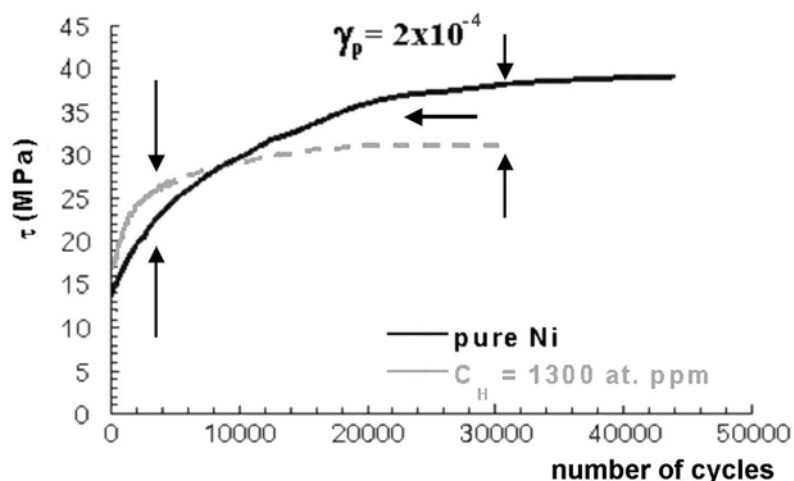


figure IV-5. Courbes de consolidation cyclique de monocristaux orientés pour glissement simple de nickel chargés ou non en hydrogène en fonction du nombre de cycles pour une déformation plastique imposée de  $2 \times 10^{-4}$ . D'après Magnin et Delafosse [15, 16].

Comparons maintenant les courbes d'écrouissage de monocristaux purs et chargés en hydrogène représentés sur la figure IV-6. Chaque courbe est obtenue en reportant les valeurs de la contrainte à saturation mesurée sur la courbe de consolidation cyclique en fonction de la déformation plastique imposée. Ainsi les valeurs à saturation mesurées sur la figure IV-5 constituent les deux premiers points des courbes en trois stades représentées sur la figure IV-6. Cette figure met en lumière les points suivants :

- L'amplitude de déformation plastique à laquelle débute le plateau est significativement retardée par l'hydrogène. Nous attribuons ce retard à l'apparition de la structure de BGP à deux mécanismes. D'une part, l'hydrogène tend à stabiliser la structure de veine ce qui contribue à retarder son effondrement en une structure de BGP illustrée par la figure IV-4 b). Le second mécanisme est la diminution de la probabilité de glissement dévié. Nous avons montré au paragraphe III.2.3.1 que les effets d'écrantage induits par la ségrégation de l'hydrogène sur les composantes coin des dislocations et la diminution de l'EDE induites par l'hydrogène contribuent à la diminution de la probabilité de glissement dévié. Aussi, il nous semble que les effets élastiques combinés aux effets de cœur induits par l'hydrogène sont responsables de cette augmentation de la déformation plastique à laquelle débute le stade B dans le cas des échantillons hydrogénés.

- La contrainte à saturation dans le domaine du plateau est abaissée de 10% en présence d'hydrogène. Cet adoucissement cyclique est à mettre en parallèle avec celui observé par Renaudot [17] par chargement cathodique en cours de cyclage. Nous avons rappelé dans la partie IV.1.1.1 que dans le domaine du plateau, la contrainte résulte de l'équilibre dynamique entre l'activation de boucles de dislocations à partir des murs et l'annihilation des parties vis de ces boucles par glissement dévié. Or, ces deux mécanismes sont affectés par l'hydrogène.

En effet, comme nous l'avons déjà évoqué, l'hydrogène diminue la probabilité de glissement dévié des dislocations vis. D'autre part nous avons montré au cours du paragraphe III.2.1 que le mécanisme de multiplication des dislocations est favorisé par la ségrégation de l'hydrogène. Ces deux contributions vont donc dans le sens d'une diminution de la contrainte à saturation dans le domaine des BGP, mais il est difficile de déterminer leur contribution respective à l'adoucissement mesuré.

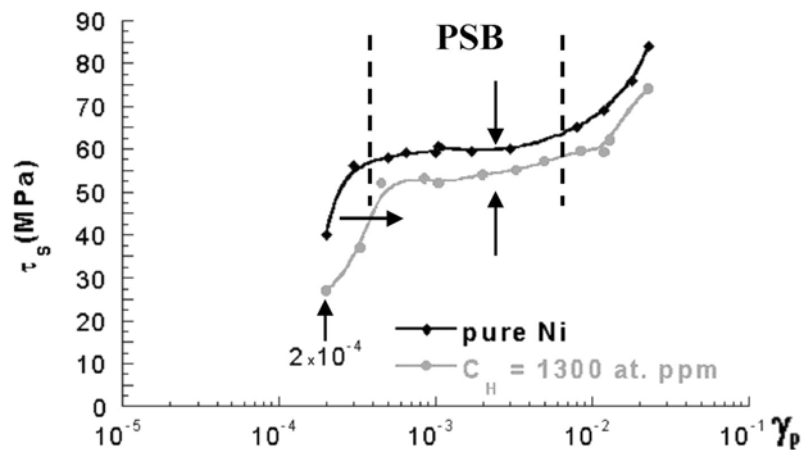


figure IV-6. Courbes d'écrouissage de monocristaux orientés pour glissement simple de nickel purs et chargés en hydrogène (1300 ppm atomique). Les essais sont effectués à la température ambiante et à une vitesse de déformation de  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . D'après Magnin et Delafosse [15, 16].

Comparons maintenant les boucles d'hystérésis à saturation de monocristaux non chargés en hydrogène et contenant 1300 ppm atomique d'hydrogène à deux niveaux de déformation plastique imposée, à savoir  $\gamma_p = 1,2 \times 10^{-3}$  et  $\gamma_p = 9 \times 10^{-3}$ . La figure IV-7 a) illustre les effets de l'hydrogène sur l'allure des boucles d'hystérésis au début du domaine des BGP alors que la figure IV-7 b) correspond au comportement au sortir de la région des BGP. Sur cette figure sont représentées les boucles d'hystérésis normalisées, l'amplitude de cisaillement plastique par le cisaillement plastique imposé et la contrainte résolue par sa valeur à saturation.

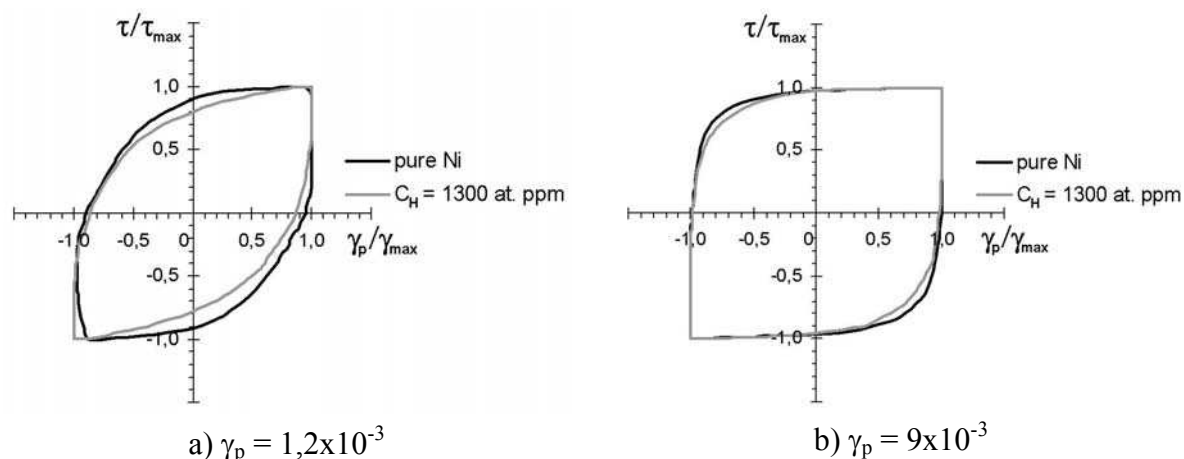


figure IV-7. Allure des boucles d'hystérésis de monocristaux de nickel purs et chargés en hydrogène dans un repère contrainte résolue normalisée-amplitude de déformation rationnelle normalisée pour : a)  $\gamma_p = 1,2 \times 10^{-3}$  et b)  $\gamma_p = 9 \times 10^{-3}$ .

L'évolution de l'allure des boucles d'hystérésis en fonction de la déformation plastique imposée, illustrée sur la figure IV-7, est conforme à l'évolution classique observée par Mughrabi [8]. En effet, il apparaît que plus la déformation plastique imposée croît, plus les boucles deviennent rectangulaires. En outre, nous constatons que la boucle d'hystérésis du monocristal non chargé est, à déformation plastique imposée équivalente, plus rectangulaire que celle correspondant au matériau hydrogéné. Il apparaît alors que le « retard » observé à l'apparition de la structure de BGP sur la figure IV-6 se répercute sur l'évolution de l'allure des boucles d'hystérésis. Il nous semble en effet que l'allure de la boucle d'hystérésis d'un monocristal chargé à une déformation plastique imposée  $\gamma_p$  corresponde à celle d'un même monocristal non chargé mais pour une déformation plastique imposée inférieure à  $\gamma_p$ . Ce qui signifie que pour une déformation plastique imposée donnée la fraction volumique de BGP est moins élevée dans le cas du matériau hydrogéné que dans le cas du matériau « pur ». L'hydrogène conduit donc à un « décalage » des courbes d'écrouissage des monocristaux vers les déformations plastiques imposées plus élevées et les contraintes à saturations plus faibles. En revanche l'hydrogène n'affecte pas l'étendu du domaine d'existence des BGP dans la mesure où  $\gamma_{p,BGP}^H > \gamma_{p,BGP}^{noH}$  et  $\gamma_{p,M}^H > \gamma_{p,M}^{noH}$ . Cette situation est résumée sur la figure IV-8.

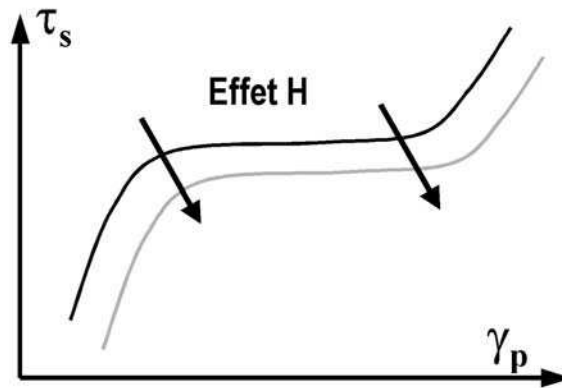


figure IV-8. Représentation schématique des effets de l'hydrogène sur la courbe d'écrouissage cyclique d'un monocristal chargé en hydrogène.

**En fatigue oligocyclique sur des monocristaux de nickel orientés pour glissement simple, les effets de l'hydrogène se manifestent par un « décalage » des courbes d'écrouissage des monocristaux vers les déformations plastiques imposées plus élevées et les contraintes à saturations plus faibles.**

#### IV.1.2 Comportement en traction

Après avoir analysé l'influence de l'hydrogène sur le comportement en fatigue de monocristaux de nickel, nous étudions les effets de l'hydrogène sur les courbes de traction de monocristaux de nickel ainsi que de l'alliage binaire Ni-16Cr orientés pour glissement simple. La particularité de la courbe de traction de monocristaux de matériaux de type CFC orientés pour glissement simple réside dans son allure typique en trois stades décrite sur la figure IV-9.

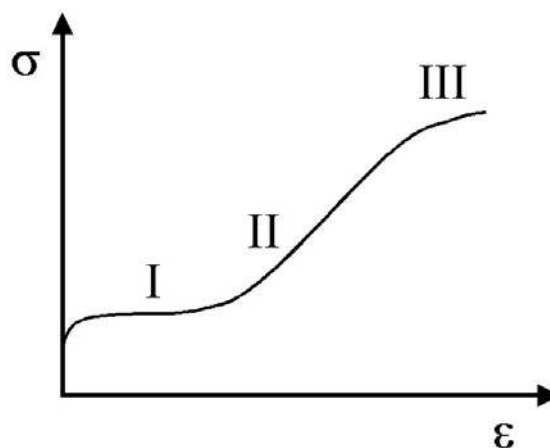


figure IV-9. Représentation schématique de la courbe contrainte-déformation en trois stades d'un matériau monocristallin de type CFC orienté pour glissement simple. D'après Friedel [18].

Les spécificités des trois domaines constitutifs de la courbe de traction sont :

- Le durcissement très faible caractéristique du stade I. Ce stade correspond au glissement facile d'un seul système de glissement. La densité de dislocations mobiles augmente au début de cette étape par l'activation et la migration des boucles de Franck-Read. L'écrouissage au cours du stade I est faible mais non nul en raison des interactions entre dislocations mobiles sur des plans voisins qui conduisent à la formation de dipôles ;
- Un écrouissage très important en stade II, appelé stade de durcissement linéaire. Ce stade correspond à l'activation de systèmes de glissement secondaires. Le fort écrouissage caractéristique de ce stade est alors une conséquence du durcissement latent induit par le stade I. Le durcissement en stade II est contrôlé par les interactions entre dislocations et en particulier par la formation de jonction entre dislocations provenant des systèmes actifs;
- Enfin, la diminution du taux d'écrouissage au cours du stade III, dit stade d'écrouissage parabolique. Dans ce domaine, Friedel [18] estime le glissement dévié joue un rôle prépondérant dans la diminution durcissement. En outre, ce stade se caractérise par le réarrangement et l'élimination de dislocations et, dans le cas des matériaux à forte et moyenne valeur de l'énergie de défaut d'empilement, par la formation de cellules.

Notre objectif est de comparer les courbes de traction de monocristaux hydrogénés orientés pour glissement simple avec celle de monocristaux non chargés afin d'évaluer l'influence de l'hydrogène sur les domaines constitutifs de la courbe de traction décrits précédemment. Pour ce faire, nous réalisons des essais de traction à la température ambiante à une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Les éprouvettes monocristallines sont chargées en hydrogène au niveau dit « haut » défini au paragraphe II.2.1.2, après avoir été polies au micron. La teneur en hydrogène, après un séjour de 48 heures à 450°C, sous une pression de 150 bars d'hydrogène, est alors de 1600 ppm atomique dans le cas du nickel et de 1800 ppm atomique pour l'alliage Ni-16Cr. Afin de comparer le comportement d'éprouvettes ayant la même « histoire thermique », nous faisons subir aux éprouvettes non hydrogénées un traitement thermique sous atmosphère d'argon correspondant aux conditions de chargement. Il est à noter que nous avons interrompu les essais de traction pour un cisaillement de 0,8 afin de pouvoir analyser l'influence de l'hydrogène sur les microstructures de dislocations par microscopie électronique en transmission. En conséquence, nous ne pouvons comparer les effets de l'hydrogène sur le stade III. Cette étude microscopique étant toujours en cours, nous ne sommes pas en mesure de présenter l'intégralité de ces résultats dans le cadre de ce mémoire.

#### IV.1.2.1 Influence de l'hydrogène sur le nickel

La figure IV-10 illustre les effets de l'hydrogène sur le comportement en traction de monocristaux de nickel orientés pour glissement simple.

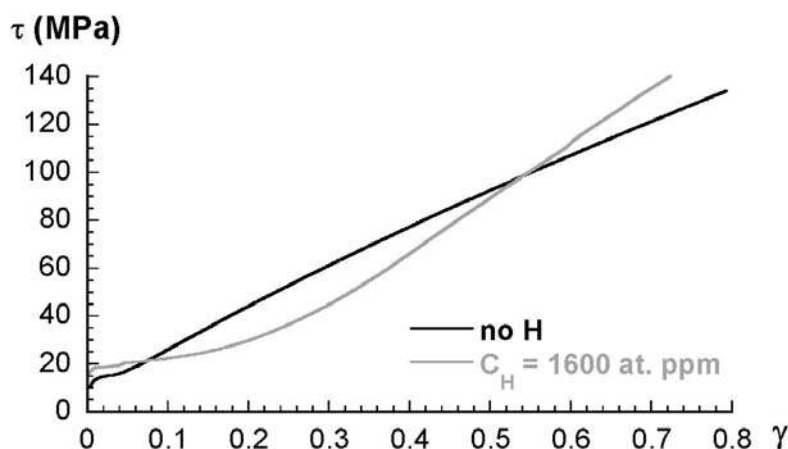


figure IV-10. Courbes contrainte résolue-cisaillement à la température ambiante de monocristaux de nickel orientés pour glissement simple. Le comportement du matériau non chargé est représenté en noir et celui du monocristal contenant 1600 ppm atomique d'hydrogène en gris.

La comparaison de ces deux courbes permet d'identifier les manifestations des effets de l'hydrogène suivantes :

- L'hydrogène provoque une augmentation notable de la valeur de la contrainte résolue d'activation du stade I. Cette augmentation de  $\tau_I$  est de l'ordre de 5 MPa ce qui correspond à une augmentation de la contrainte vraie de l'ordre de 10 MPa. Il nous apparaît que cet accroissement de  $\tau_I$  est imputable au traînage des atmosphères d'hydrogène par les dislocations mobiles. En effet, au chapitre II, nous avons mis en évidence le fait que, dans le cas du nickel, les dislocations traînent en permanence leur atmosphère d'hydrogène lors d'essais effectués à la température ambiante et pour des vitesses de déformation ordinaire. Cette valeur de 10 MPa est à rapprocher de l'augmentation de la contrainte cyclique initiale mesurée sur la courbe de consolidation cyclique d'un monocristal orienté pour glissement simple illustrée par la figure IV-5. En outre, la valeur de cette augmentation est en rapport avec la valeur de la contrainte maximale d'épinglage déterminée dans le cas du nickel, à savoir environ 20 MPa pour une densité de dislocations plus élevée.

- Le second effet notable de l'hydrogène concerne le domaine d'existence du stade I. Il ressort de la comparaison entre les courbes contrainte-déformation présentées figure IV-10 que la présence d'hydrogène conduit à un allongement significatif du stade de glissement plan. Par ailleurs, il est à noter que le stade I du monocristal « pur » est particulièrement restreint. Ce résultat est à mettre en parallèle avec ceux obtenus par Yagodzinsky *et al.* [5] illustrés sur la figure I-14. Dans cette étude, ils constatent notamment que l'hydrogène retarde

l'apparition du stade II dans le cas d'un monocristal d'acier austénitique de type 18Cr-16Ni-10Mn contenant 0,7% atomique d'hydrogène. Cette extension du domaine de glissement plan est aussi à rapprocher des résultats présentés au paragraphe IV.1.1.2 à savoir le retard à l'apparition du domaine des BGP. Il nous semble que cette différence de comportement est imputable au fait que la transition stade I-stade II requiert l'activation de nouvelles sources de dislocations par un mécanisme de double glissement dévié, ainsi que le durcissement de bandes de glissements, probablement par la formation de dipôles. Or, nous avons vu que l'une des conséquences de l'écrantage des interactions de paires induit par l'hydrogène est la diminution de la probabilité de glissement dévié. L'hydrogène tend donc à confiner les dislocations sur leur plan de glissement, le glissement se concentrant dans des bandes à forte déformation.

- Suite au stade de glissement plan, nous constatons que l'hydrogène provoque une augmentation significative du durcissement qui se traduit par un croisement des courbes contrainte-déformation pour un cisaillement de 0,6. Nous reportons sur la figure IV-11 l'évolution du taux d'écrouissage des monocristaux de nickel chargés et non chargés en fonction du cisaillement. Il apparaît en premier lieu que la présence d'hydrogène affecte la transition entre les stades I et II. Dans le cas de l'éprouvette non chargée, nous constatons que cette transition est rapide contrairement au monocristal chargé qui présente une transition bien plus lente.

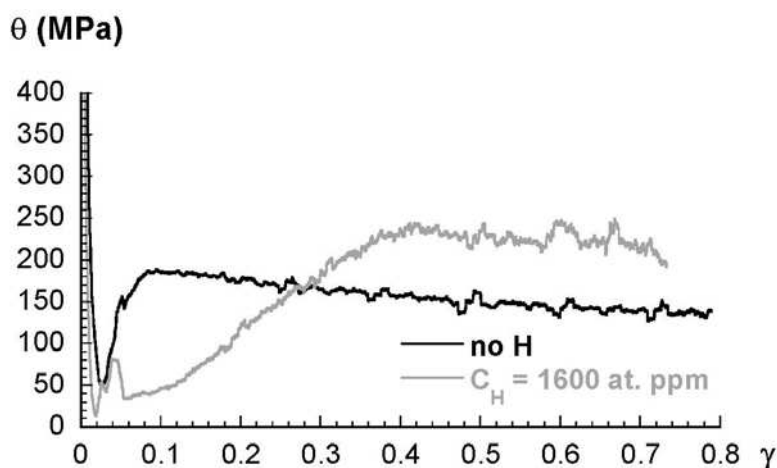
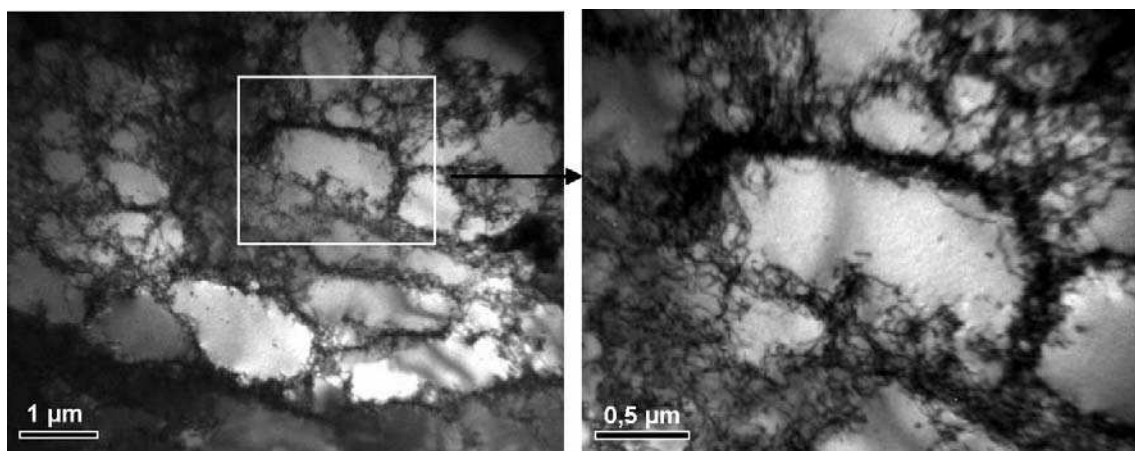


figure IV-11. Courbes taux d'écrouissage-cisaillement de monocristaux de nickel orientés pour glissement simple. Le comportement du matériau non chargé est représenté en noir et celui du monocristal contenant 1600 ppm atomique d'hydrogène est représenté en gris.

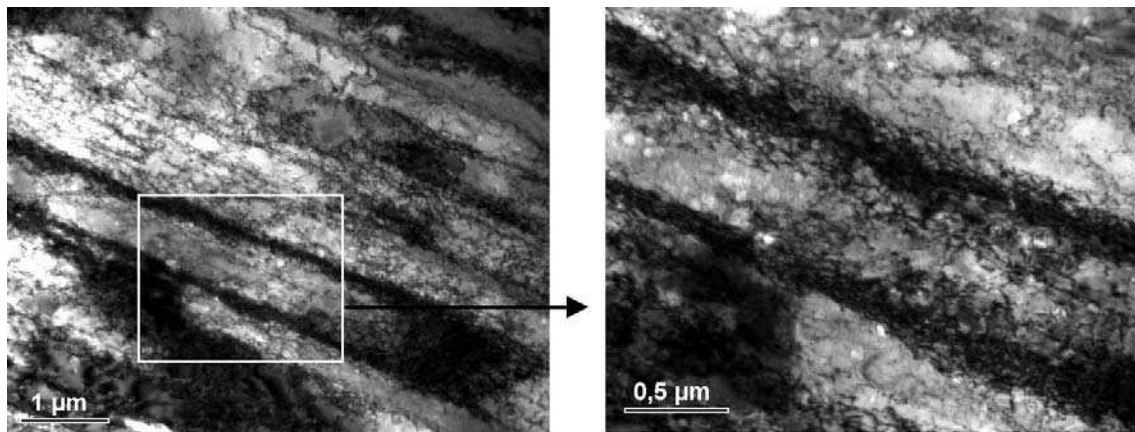
Afin d'interpréter cet effet durcissant, nous analysons les microstructures de dislocations des matériaux hydrogénés et « purs » en microscopie électronique en transmission. Nous présentons ici les premiers résultats de cette étude, actuellement en cours, réalisée en collaboration avec Xavier Feaugas (LEMMA – Université de la Rochelle). La figure IV-12



illustre la différence de microstructure de dislocations observée entre le nickel et le nickel hydrogéné pour une même déformation plastique,  $\gamma = 0,8$ . Ces images montrent que l'effet principal de l'hydrogène sur les microstructures de déformation est de retarder le glissement dévié. La figure IV-12 a) met en lumière le fait que pour une telle déformation le matériau « pur » présente une structure en cellules typique du stade III. Le libre parcours moyen des dislocations est alors de  $3 \mu\text{m}$ . En revanche, pour un même cisaillement, la microstructure de dislocations du nickel hydrogéné est constituée de murs denses. Le libre parcours moyen d'une dislocation,  $0,44 \mu\text{m}$ , est bien moindre que celui mesuré dans le cas du nickel. Nous attribuons cet effet durcissant à la différence de microstructure observée imputable au fait que l'hydrogène retarde l'apparition du stade III.



a) Ni « pur »



b) Ni hydrogéné  $C_H = 1600$  ppm atomique

figure IV-12. Comparaison entre les structures de dislocations pour un cisaillement de 0,8 entre a) du nickel pur et b) du nickel hydrogéné ( $C_H = 1600$  ppm atomique), après une traction à la température ambiante et pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Les courbes de tractions de ces deux éprouvettes sont reportées sur la figure IV-10.

**Au cours d'un essai de traction à la température ambiante sur des monocristaux de nickel orientés pour glissement simple, l'hydrogène induit une augmentation de  $\tau_1$ , une extension du stade de glissement plan et retarde l'émergence du stade III.**

#### IV.1.2.2 Comportement en traction de l'alliage Ni-16Cr

Après avoir étudié l'influence de l'hydrogène sur le comportement en fatigue et en traction de monocristaux de nickel, nous analysons les effets de l'hydrogène des monocristaux d'alliage binaire Ni-16Cr orientés pour glissement simple sollicités en traction. Avant de passer à l'étude des effets de l'hydrogène, nous caractériserons le matériau pur, et en particulier les effets sur le glissement induits par la présence de chrome.

Les propriétés mécaniques des alliages à forte concentration, au-dessus de 10% de concentration atomique, peuvent être affectées par la présence d'un Ordre à Courte Distance (OCD) [19]. La formation d'un OCD ou d'amas à courte distance dans les alliages modifie alors les mécanismes de la plasticité. En effet, Gerold et Karnthaler [20] estiment que le glissement planaire observé dans de nombreux alliages CFC est la conséquence de la destruction de cet OCD. L'explication de cette planéité accrue peut se résumer comme suit :

- les dislocations de tête émises par une source détruisent cet ordre, par la formation d'un empilement dense ;
- une fois cette barrière franchie, le glissement des dislocations sur un unique plan est facilité.

D'autres mécanismes sont généralement invoqués pour expliquer la planéité du glissement des alliages CFC, en particulier la diminution de l'Energie de Défaut d'Empilement (EDE),  $\Gamma$ . Cependant, Gerold et Karnthaler considèrent que la diminution de  $\Gamma$  ne joue pas un rôle prépondérant dans la planéité du glissement. Ils estiment que les effets liés à la formation d'un OCD ou d'amas à courte distance sont principalement à l'origine du glissement planaire. Dans le cas des alliages Ni-Cr, les travaux de Clément *et al.* [21] ont mis en évidence la présence d'un OCD pour des teneurs en chrome de 30% atomique. En revanche, ils n'en n'observent pas dans le cas d'un alliage contenant 10% atomique de chrome.

Comme nous venons de le voir, l'EDE est un des paramètres qui régit le caractère plan du glissement, même s'il n'est pas prépondérant. L'influence de la teneur en chrome sur la valeur de  $\Gamma$  a été étudiée en détail par Clément et Coulomb [10]. Ils ont montré que l'addition de chrome dans du nickel se traduit par une diminution notable  $\Gamma$ . Cette diminution est très marquée pour des teneurs en chrome inférieures à 15%, puis, à partir de 20% de chrome, la valeur de l'EDE se stabilise autour de  $75 \text{ mJ.m}^{-2}$ . L'EDE du nickel étant de  $100 \text{ mJ.m}^{-2}$ , la présence de 16% de chrome aboutit à une diminution de 20% de  $\Gamma$ , puisque celle-ci est sensiblement supérieure à  $80 \text{ mJ.m}^{-2}$  pour une teneur en chrome de 15%.

Pour une concentration de 16% massique de chrome, nous considérons comme très probable la présence d'un ordre à courte distance. En outre, une telle teneur en chrome conduit à une diminution de l'ordre de 20% de l'EDE par rapport à celle du nickel. Pour ces deux raisons, nous nous attendons à observer un glissement planaire. Le comportement en traction de l'alliage est illustré sur la figure IV-13. Sur cette figure, nous constatons que le stade I du Ni-16Cr non hydrogéné est nettement plus étendu que celui du nickel (figure IV-10). Ce résultat est en accord avec les observations de Akhtar et Teghtsoonian [22] qui notent une extension du stade I avec la teneur en chrome.

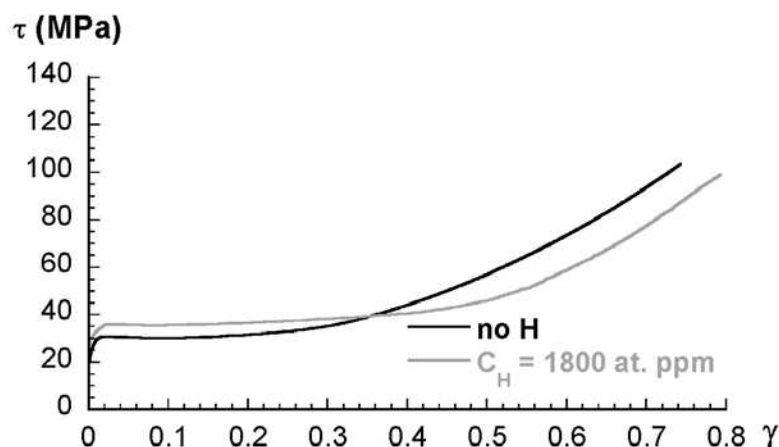


figure IV-13. Courbes contrainte résolue-cisaillement à la température ambiante de monocristaux de Ni-16Cr orientés pour glissement simple. Le comportement du matériau non chargé est représenté en noir et celui du monocristal contenant 1800 ppm atomique d'hydrogène en gris.

La comparaison des courbes avec et sans hydrogène met en lumière les effets suivants :

- Nous observons une augmentation de la contrainte résolue  $\tau_1$  comparable à celle mesurée dans le cas du nickel monocristallin, c'est à dire de 5 MPa. Nous attribuons cet effet durcissant au traînage visqueux des atmosphères d'hydrogène, étudié au chapitre II par le biais d'essais de vieillissement.

- Il ressort de la figure IV-13 que l'hydrogène retarde significativement l'activation du stade II. Cette extension du stade I est, en valeur relative, moins importante que dans le cas du nickel monocristallin. Nous attribuons ce retard à l'émergence du stade II à la diminution de la probabilité de glissement dévié induite par l'hydrogène ainsi qu'à la diminution des interactions dipolaires.

- Enfin, après le stade de glissement plan, nous observons que le comportement de l'alliage Ni-16Cr diffère de celui du monocristal de nickel. En effet, alors que les courbes contrainte-déformation du nickel chargé et non hydrogéné se croisent, nous observons une évolution quasi-parallèle du durcissement dans le cas de l'alliage pour des cisaillements

inférieurs à 0,8. Nous reportons sur la figure IV-14 l'évolution du taux d'écrouissage du monocristal en fonction du cisaillement. Il apparaît que le taux de durcissement des monocristaux « purs » et hydrogénés est négatif dans les premiers pour-cent du stade I ce qui indique qu'il y a localisation de la déformation. Cette figure met en évidence le fait que, pour des cisaillements inférieurs à 0,8, le stade de durcissement linéaire n'est en réalité pas atteint.

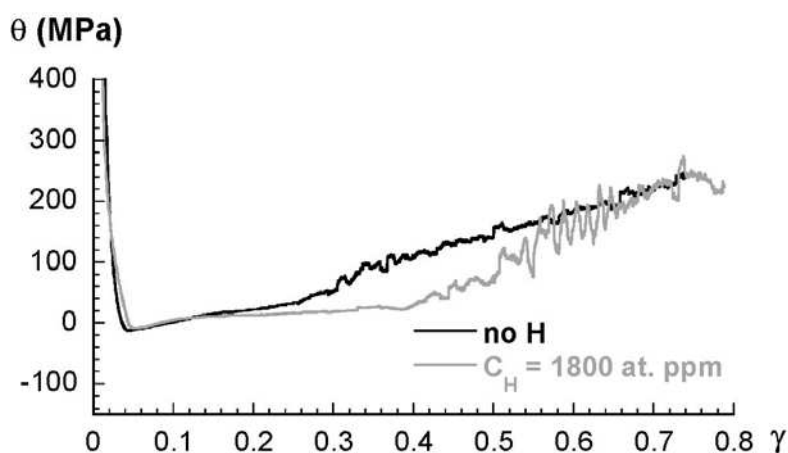


figure IV-14. Courbes taux d'écrouissage-cisaillement de monocristaux de Ni-16Cr orientés pour glissement simple. Le comportement du matériau non chargé est représenté en noir et celui du monocristal contenant 1800 ppm atomique d'hydrogène en gris.

**Les effets de l'hydrogène sur le comportement en traction de monocristaux de Ni-16Cr orientés pour glissement simple se manifestent par une augmentation de  $\tau_1$  et une extension du stade de glissement plan.**

## IV.2 Effets de l'hydrogène sur le comportement en traction de polycristaux

Nous venons de caractériser les effets de l'hydrogène sur le comportement de monocristaux de nickel et d'alliage Ni-16Cr en fatigue oligocyclique et en traction à la température ambiante. Ces essais ont mis en évidence le fait que l'hydrogène favorise significativement le glissement plan dans ces matériaux. En outre, nous avons constaté une différence de comportement entre le nickel et l'alliage Ni-16Cr en ce qui concerne les effets durcissant. Dans le cas du nickel, l'hydrogène provoque un durcissement alors que le stade de durcissement linéaire n'est pas affecté par la présence d'hydrogène. Dans ce paragraphe, nous analysons les effets de l'hydrogène sur le comportement en traction de polycristaux de ces deux matériaux et d'un acier austénitique AISI 316. Nous divisons ce paragraphe en fonction des matériaux analysés, à savoir le nickel, l'alliage Ni-16Cr, et pour finir l'acier austénitique AISI 316. La géométrie des éprouvettes utilisées, les caractéristiques des matériaux et la méthode de chargement employée sont données au paragraphe II.2.1. Les essais de traction

présentés dans ce paragraphe sont effectués à la température ambiante et à une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Comme nous l'avons vu dans le chapitre II, ce domaine de vitesse de déformation et de température se situe au-delà du domaine de vieillissement dynamique ce qui signifie que les dislocations sont en permanence épinglées par leur nuage d'hydrogène.

#### IV.2.1 Influence de l'hydrogène sur le comportement en traction du nickel

Dans le cas du nickel, nous comparons le comportement en traction d'éprouvettes chargées en hydrogène aux deux niveaux de concentration, définis dans le tableau II-3, avec celui d'éprouvettes non hydrogénées. Les courbes contrainte-déformation sont représentées sur la figure IV-15.

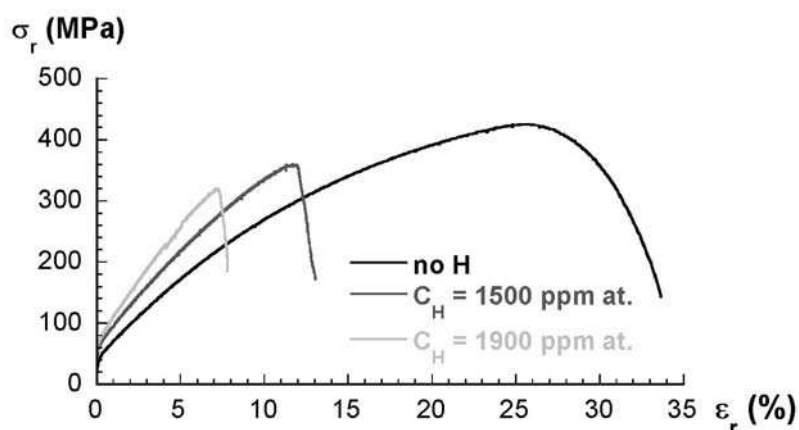
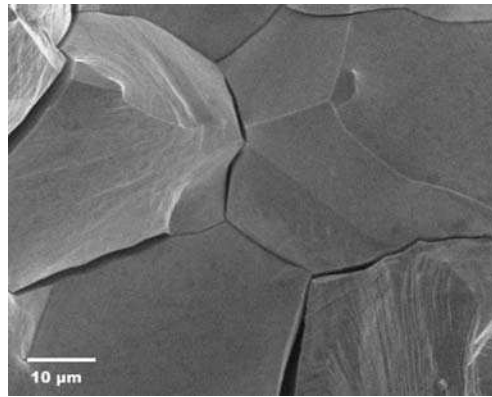


figure IV-15. Courbes contrainte vraie-déformation vraie du nickel 270 polycristallin non chargé et chargé en hydrogène aux niveaux « bas » et « haut » ( $C_H = 1500$  et  $1900 \text{ ppm}$  atomique) pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  à la température ambiante.

La comparaison de ces courbes permet d'identifier les manifestations des effets de l'hydrogène suivantes :

- La présence d'hydrogène se traduit par une diminution significative de l'allongement à rupture du nickel 270 polycristallin. La rupture intergranulaire fragile illustrée sur la figure IV-16 est probablement imputable aux effets fragilisants combinés de l'hydrogène et du soufre au niveau des joints de grains. Comme nous l'avons précisé au chapitre II nous observons une telle fragilité dans toute la gamme de températures balayée lors de l'étude du vieillissement statique.



*figure IV-16. Observation au MEB des faciès de rupture du Ni contenant une concentration de 1900 ppm atomique d'hydrogène à la température ambiante pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ .*

- L'hydrogène induit une augmentation de la limite d'élasticité,  $R_{0,2}$ . Alors que la limite d'élasticité du matériau « pur » vaut 45 MPa, nous mesurons une hausse de  $R_{0,2}$  sensiblement inférieure à 20 MPa pour une teneur de 1500 ppm atomique et de l'ordre de 25 MPa pour une teneur de 1900 ppm atomique d'hydrogène. Cet effet durcissant correspond au traînage des atmosphères d'hydrogène qui ancrent les dislocations dans le domaine de vitesse de déformation et de température étudié.

- La troisième manifestation des effets de l'hydrogène se rapporte au taux d'écrouissage. Nous notons que le nickel hydrogéné présente un durcissement nettement plus marqué que le matériau non chargé. L'évolution du taux d'écrouissage en fonction de la déformation vraie est représentée sur la figure IV-17. Cette courbe illustre l'effet significatif de la teneur en hydrogène sur le durcissement du nickel. Plus la teneur en hydrogène augmente, plus le taux d'écrouissage croît. Nous constatons que les taux d'écrouissage des matériaux chargés et non chargés présentent le même type d'évolution en fonction de la déformation, la décroissance de ces trois courbes étant parallèle.

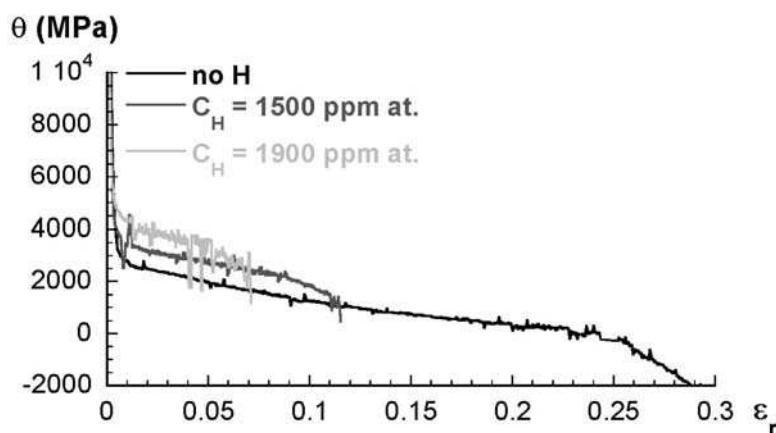


figure IV-17. Courbes taux d'écrouissage-déformation vraie du nickel 270 non chargé et chargé en hydrogène au niveau bas et haut ( $C_H = 1500$  et  $1900$  ppm atomique) à la température ambiante pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ .

En complément de ces essais sur des polycristaux, nous réalisons des essais de traction sur des monocristaux de nickel orientés pour glissement multiple. L'orientation de l'axe de traction est de type  $\langle 100 \rangle$  ce qui conduit, lors d'un essai de traction, à l'activation simultanée de 8 systèmes de glissement. Les éprouvettes utilisées sont similaires à celles employées lors des essais présentés au paragraphe IV.1, leur géométrie est détaillée sur la figure IV-1. Pour cet essai, l'hydrogénation des éprouvettes est effectuée dans les conditions « hautes » ce qui conduit à une teneur en hydrogène de 1600 ppm atomique. La courbe de traction est présentée sur la figure IV-18. Nous retrouvons un comportement similaire à celui observé dans le cas des polycristaux de nickel, à savoir une augmentation de la limite d'élasticité ainsi qu'un accroissement significatif du taux d'écrouissage. Nos résultats sont comparables à ceux de Boniszewski et Smith [6] présentés et commentés au paragraphe I.3.3 et illustrés par la figure I-15.

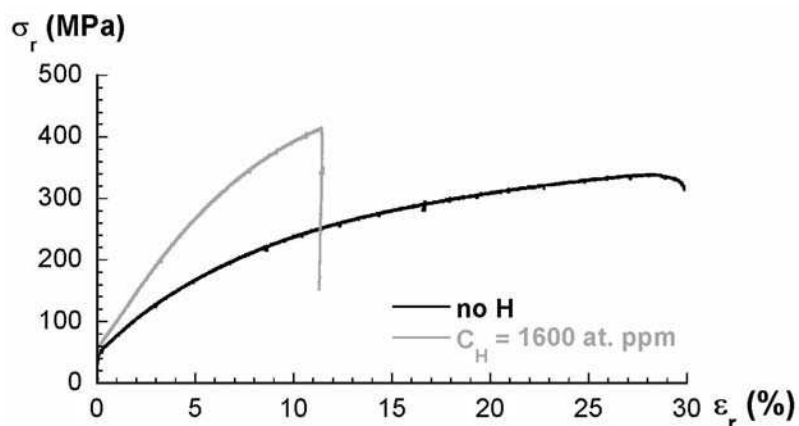


figure IV-18. Courbes contrainte vraie-déformation vraie de monocristaux de nickel orientés pour glissement multiple non hydrogéné et chargé en hydrogène ( $C_H = 1600$  ppm atomique) à la température ambiante pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ .

**A la température ambiante, les effets de l'hydrogène sur le comportement en traction de polycristaux de nickel 270 se manifestent par une augmentation sensible de la limite d'élasticité et une augmentation notable du taux d'écrouissage. Des effets similaires sont observés sur des monocristaux de nickel orientés pour glissement multiple en traction.**

#### IV.2.2 Effet de l'hydrogène sur l'alliage binaire Ni-16Cr

Dans le paragraphe II.2.3.2, nous avons caractérisé le rôle du transport de l'hydrogène par les dislocations dans les mécanismes de fragilisation de l'alliage binaire Ni-16Cr. Ces effets conduisent à une diminution significative de l'allongement à rupture à la température ambiante comme en témoigne la figure IV-19.

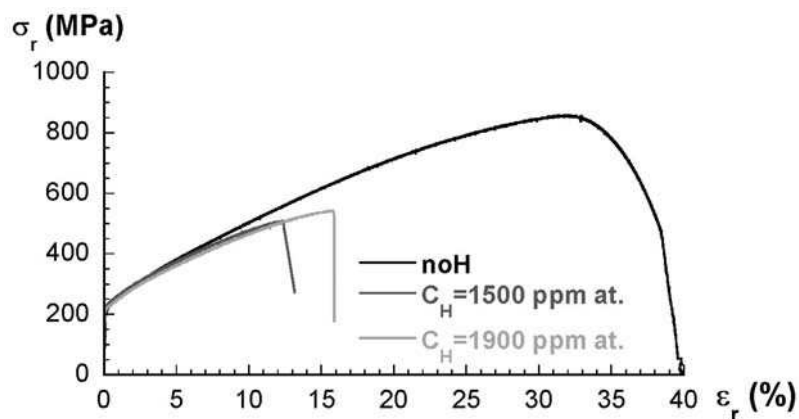


figure IV-19. Courbes contrainte vraie-déformation vraie de l'alliage binaire Ni-16Cr non chargé et chargé en hydrogène aux niveaux « bas » et « haut » ( $C_H = 1500$  et  $1900$  ppm atomique) pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  à la température ambiante.



Sur les courbes contrainte-déformation de l'alliage, nous constatons que l'hydrogène n'affecte pas ou peu la limite d'élasticité,  $R_{0,2}$ , de ce matériau, qui vaut 220 MPa. En revanche, il apparaît que la présence d'hydrogène provoque une diminution significative du durcissement. L'évolution du taux d'écrouissage ( $\theta = d\sigma_r/d\varepsilon_r$ ) en fonction de la déformation vraie est représentée sur la figure IV-20. Nous observons que les courbes présentent le même type d'évolution en deux stades, à savoir une baisse significative pour les premiers pour-cent de déformation puis, à partir de 4%, une décroissance linéaire moins marquée. De plus, contrairement au cas du nickel, nous ne constatons pas de différence significative entre le comportement de l'alliage contenant 1500 ppm atomique et celui chargé au niveau « haut » (1900 ppm atomique).

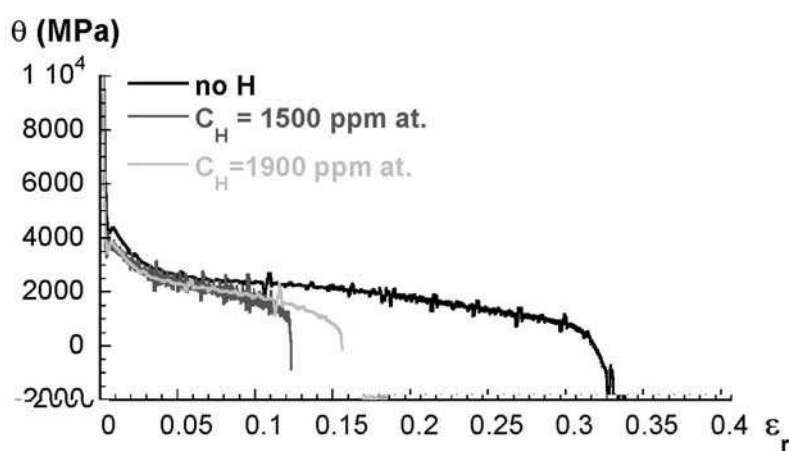


figure IV-20. Courbes taux d'écrouissage-déformation vraie de l'alliage binaire Ni-16Cr non chargé et chargé en hydrogène aux niveaux « bas » et « haut » ( $C_H = 1500$  et  $1900$  ppm atomique) pour une vitesse de déformation de  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  à la température ambiante.

Comme nous l'avons précisé, le choix de la composition de cet alliage vise à se rapprocher de matériaux industriels, et en particulier de l'alliage 600. Dans le cadre de l'étude des mécanismes de corrosion sous contrainte de l'alliage 600 en milieu PWR, Foct *et al.* [23] ont également observé l'influence intrinsèque de l'hydrogène sur le comportement mécanique de cet alliage. Pour ce faire, ils ont effectué des essais de traction sur des éprouvettes non chargées et des éprouvettes hydrogénées par chargement cathodique. Les effets de l'hydrogène sur l'alliage 600 à la température ambiante sont représentés sur la figure IV-21. Il apparaît qu'une teneur en hydrogène de 0,74% atomique provoque une fragilisation marquée de l'alliage ainsi qu'une diminution du taux d'écrouissage. Ces résultats vont donc dans le sens de ceux observés sur l'alliage Ni-16Cr.

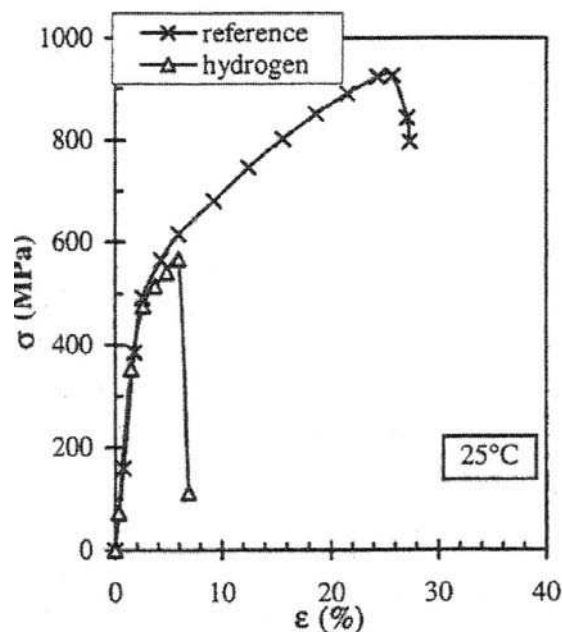


figure IV-21. Courbes contrainte-déformation d'un alliage 600 non chargé et hydrogéné par chargement cathodique (0,74% atomique) pour une vitesse de déformation de  $4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  à la température ambiante. D'après Foct et al. [23].

**Au cours d'un essai de traction à la température ambiante sur du Ni-16Cr polycristallin, l'hydrogène induit une diminution du taux d'écrouissage.**

#### IV.2.3 Effets de l'hydrogène sur un acier austénitique AISI 316L

Pour clore cette étude, nous analysons les effets de l'hydrogène sur le comportement en traction d'un acier austénitique de type AISI 316L. Les éprouvettes utilisées dans le cadre de cette étude présentent une géométrie identique à celles de nickel et de Ni-16Cr utilisées lors des essais de vieillissement. La composition de cet acier est donnée dans le tableau IV-1. Les éprouvettes subissent un recuit d'homogénéisation de 1075°C pendant 45 minutes suivi d'une trempe à l'eau.

tableau IV-1 : Composition de l'acier AISI 316L en % massique

C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo	Ni	Cu	Fe
< 0,03	0,5	1,5	0,026	0,026	16,1	2,0	10,5	0,5	bal.

Nous testons une seule concentration en hydrogène, celle obtenue par un chargement correspondant au niveau « haut ». Dans ces conditions, la teneur en hydrogène mesurée est de 0,25% atomique. Nous comparons le comportement en traction d'éprouvettes chargées et non

hydrogénées pour une vitesse de déformation de  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . Les figures IV-19 a) et b) présentent les courbes contrainte-déformation et l'évolution du taux d'écrouissage pour des essais réalisés à la température ambiante.

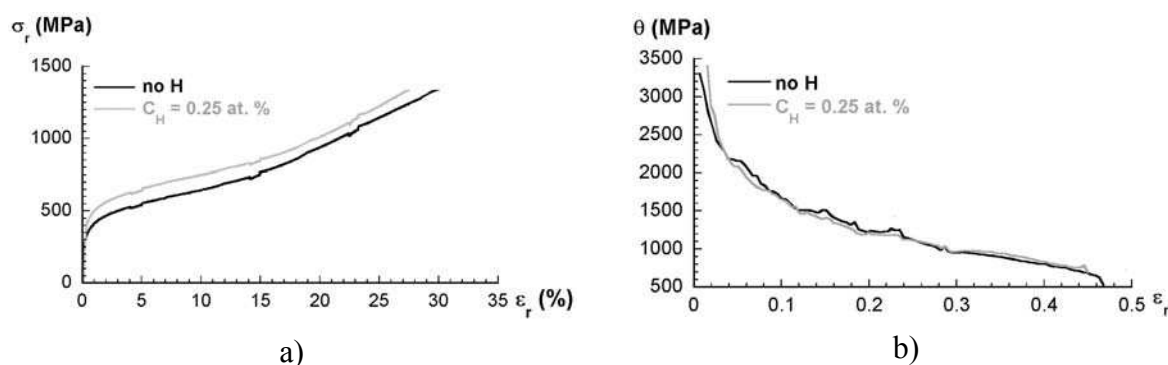


figure IV-22. Influence de l'hydrogène ( $C_H = 0,25\%$  atomique) sur le comportement en traction d'un acier austénitique AISI 316L à la température ambiante pour une vitesse de déformation de  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$ .

a) Courbes contrainte vraie-déformation vraie,

b) Evolution du taux d'écrouissage en fonction de la déformation vraie.

Pour une teneur en hydrogène de 0,25% atomique, nous n'observons pas d'effet fragilisant de l'hydrogène sur cet acier austénitique à la température ambiante. La coupure des courbes pour une déformation de 50% correspond aux limites de l'extensomètre utilisé. Dans les deux cas, la rupture observée est ductile. La présence d'hydrogène se manifeste par une augmentation de la limite d'élasticité de 40 MPa. En outre, il apparaît que, pour une teneur en hydrogène de 0,25% atomique, le taux d'écrouissage n'est pas affecté par la présence d'hydrogène comme en atteste la figure IV-22 b). En conséquence, nous observons des courbes contrainte-déformation strictement parallèles. Ce résultat est à rapprocher des observations de Abraham et Alstetter [3] sur les effets de l'hydrogène sur un acier austénitique de type AISI 310s. Pour une concentration de 0,25% atomique, ils observent un effet comparable comme en atteste la figure IV-23. Ces résultats vont dans le sens des travaux de Teyseyre [24] sur des aciers inoxydables super austénitiques à l'azote URB6 (de composition Cr = 24%, Ni = 22%, N variant entre 0,3 et 0,47% en masse) et URB66 (de composition Cr = 20%, Ni = 24,5%, N variant entre 0,07 et 0,25% en masse). Il observe une augmentation de la limite d'élasticité,  $R_{0,2}$ , de 10 MPa dans l'acier URB6 pour une teneur en hydrogène de 2000 ppm atomique et, dans le cas de l'acier URB66, cette augmentation est de 30 MPa pour une concentration de 3000 ppm atomique. Dans les deux cas il n'observe pas d'effet significatif de l'hydrogène sur le taux d'écrouissage. En outre, cette étude montre que les effets induits par l'hydrogène sont indépendants de la teneur en azote.

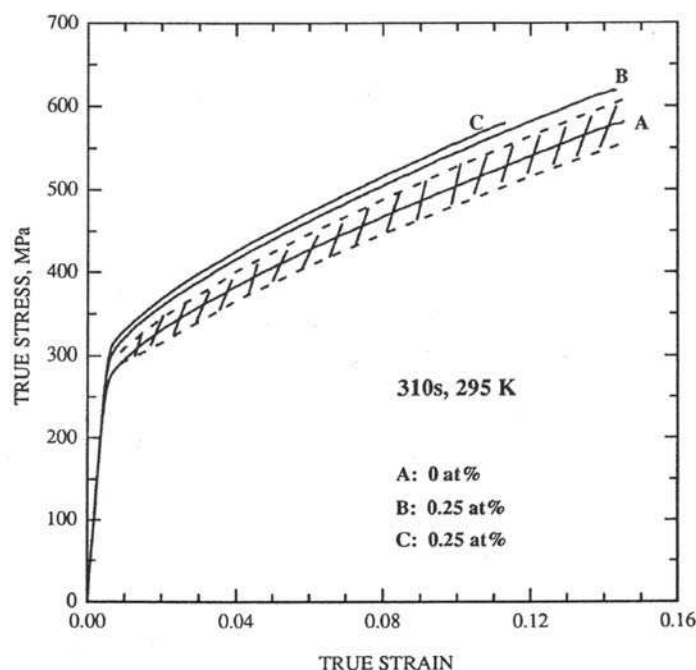


figure IV-23. Courbes contrainte vraie-déformation vraie à la température ambiante pour une vitesse de déformation de  $5,5 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$  de l'acier austénitique AISI 310s non hydrogéné et pour une teneur en hydrogène de 0,25% atomique. D'après Abraham et Alstetter [3].

**A la température ambiante, une concentration de 0,25% atomique provoque une augmentation de la limite d'élasticité d'un acier austénitique 316L mais n'affecte pas le taux d'écrouissage.**

### IV.3 Discussion sur les manifestations macroscopiques de l'hydrogène

Dans ce chapitre, nous avons caractérisé un certain nombre de manifestations macroscopiques des effets de l'hydrogène. Nous avons testé le comportement de monocristaux de nickel et d'un alliage binaire Ni-16Cr orientés pour glissement simple. Dans le cas du nickel, deux types de sollicitations ont été étudiées, des essais de fatigue oligocyclique ainsi que des essais de traction uniaxiale. Ces essais illustrent le rôle du mode de sollicitation sur la nature des effets observés. En fatigue oligocyclique, la présence d'hydrogène induit un retard à l'apparition des BGP ainsi qu'un effet « adoucissant » sur la contrainte cyclique à saturation. En revanche, les essais de traction sur des monocristaux de nickel mettent en évidence le fait que l'hydrogène retarde l'apparition du stade II et provoque une augmentation du taux d'écrouissage. Les essais de traction sur des monocristaux orientés pour glissement simple d'alliage Ni-16Cr mettent aussi en lumière le fait que la présence d'hydrogène se manifeste par une extension du stade de glissement plan, mais aucun effet sur le taux d'écrouissage n'est observé dans le domaine de déformation étudié. Dans un second

temps, nous avons réalisé des essais de traction sur trois matériaux polycristallins, à savoir du nickel, un alliage binaire Ni-16Cr et un acier austénitique de type AISI 316L. Nous notons alors trois comportements différents en fonction du matériau testé. Nous observons un effet durcissant dans le cas du nickel, adoucissant pour le Ni-16Cr et, dans le cas de l'acier austénitique 316L, la présence d'hydrogène se traduit par une hausse de la limite d'élasticité, sans pour autant affecter le taux d'écrouissage.

L'objectif de la discussion qui suit est de confronter ces résultats aux effets de l'hydrogène sur les mécanismes de la plasticité présentés au chapitre III. Nous divisons cette discussion en trois points. Le premier est consacré à la planéité du glissement, le suivant aux mécanismes de durcissement. Pour clore cette discussion, nous examinons les perspectives ouvertes par cette étude.

### IV.3.1 Le glissement plan

Les essais réalisés sur des monocristaux orientés pour glissement simple permettent de caractériser l'influence de l'hydrogène sur la planéité du glissement. Nous constatons qu'il suffit d'une faible quantité d'hydrogène (1300 à 1900 ppm atomique) pour observer des manifestations marquées de ces effets. Compte tenu des faibles concentrations impliquées, nous pouvons exclure tout effet lié à la présence d'un ordre à courte distance induit par l'hydrogène comme cela peut être le cas pour de nombreux alliages binaires CFC. Outre cette faible teneur en hydrogène, le second point qui nous conduit à réfuter cette hypothèse est que, dans les domaines de température et de vitesse de déformation testés, l'hydrogène est plus mobile que les dislocations. En conséquence, le glissement planaire provoqué par l'hydrogène est induit par un autre type de mécanisme. Nous avons montré au paragraphe III.2.3.1 que les effets élastiques seuls peuvent expliquer la diminution de la probabilité de glissement dévié des dislocations. En effet, l'écrantage des interactions de paires provoque un élargissement du ruban de faute et donc une augmentation du travail de nécessaire à la recombinaison des partielles en une dislocation vis parfaite. Cependant, le point d'achoppement d'un raisonnement basé uniquement sur la diminution des interactions élastiques entre dislocations est la teneur en hydrogène pour laquelle ces effets se manifestent. Dans notre cas, la teneur en hydrogène correspond à une valeur de l'indice d'écrantage  $S(T,c)$  inférieure à 3%. Une telle valeur correspond à une augmentation du travail de recombinaison de 4%, ce qui est insuffisant pour expliquer les effets observés. La diminution de la probabilité de glissement dévié peut aussi être interprétée en termes d'effets de cœur. C'est d'ailleurs l'explication généralement retenue pour interpréter l'accroissement de la planéité du glissement observé en présence d'hydrogène. Ferreira *et al.* [25] estiment, par des mesures de rayons de courbure de nœuds triples en MET *in-situ*, qu'une pression d'hydrogène de 40 torr induit une diminution de l'EDE de 20% dans un acier inoxydable de type 310s. Mais, au regard de ces résultats,

Robertson [26] estime que de tels effets ne peuvent expliquer à eux seuls la diminution de la probabilité de glissement dévié observée dans le cas de matériaux tels que le nickel. Or, le calcul effectué sur le nœud triple au paragraphe III.2.3.3. montre que le glissement planaire induit par l'hydrogène résulte de la conjugaison d'effets de cœur et d'effets élastiques. Cette diminution de la probabilité de glissement dévié permet alors d'expliquer pour partie la diminution de la contrainte cyclique à saturation, l'extension du stade I des monocristaux orientés pour glissement simple et le retard à l'apparition du stade III. Le retard à l'émergence du stade III se manifeste par la différence de microstructure de dislocations observée entre le nickel et le nickel hydrogéné pour une même déformation plastique. Une conséquence indirecte du retard à l'émergence du stade III est l'augmentation du durcissement constaté dans le cas du nickel chargé en hydrogène. En revanche, nous n'avons pu étudié l'effet de l'hydrogène sur le stade II dans le cas de l'alliage Ni-16Cr. Nous avons en effet interrompu notre essai avant l'émergence de ce stade afin de pouvoir comparer les microstructures de dislocations au MET. Ce travail, actuellement en cours, n'est pas présenté dans ce manuscrit.

### **IV.3.2 Les mécanismes de durcissement**

Les essais de traction sur des éprouvettes polycristallines, présentés dans le paragraphe IV.2, mettent en évidence trois types de comportement induit par l'hydrogène, à savoir une augmentation du taux d'écrouissage (nickel), une diminution (Ni-16Cr) et, dans le cas d'un acier austénitique, l'absence d'effet sur le durcissement. Or, les interactions à courte distance entre dislocations, en particulier la formation de jonctions, jouent un rôle prépondérant dans les mécanismes de durcissement. Dans le chapitre III, nous avons examiné les effets de l'hydrogène sur deux types de jonctions, celles qui résultent d'interactions entre dislocations parfaites et les jonctions entre dislocations partielles de type Lomer-Cottrell.

L'une des principales différences entre le nickel et les deux autres matériaux testés réside dans la valeur de l'Energie de Défaut d'Empilement (EDE) ainsi que dans la probable présence d'un ordre à courte distance. En effet, alors que le nickel a une forte EDE,  $\Gamma$ , les deux autres matériaux possèdent des EDE plus faibles, en particulier l'acier austénitique 316L pour lequel  $\Gamma$  vaut  $28 \text{ mJ.m}^{-2}$ . Dans ces matériaux les dislocations vont donc fortement avoir tendance à se dissocier. Le durcissement de ces matériaux est donc, pour partie, contrôlé par la formation de jonctions de type Lomer-Cottrell impliquant des dislocations dissociées. Nous avons étudié les effets de l'hydrogène sur le comportement de ces jonctions dans le paragraphe III.2.3.2. Il en ressort que l'hydrogène diminue significativement la résistance de telles jonctions en diminuant la largeur de la barrière ainsi formée. Une telle contribution va donc dans le sens d'une diminution de l'écrouissage. En outre, compte tenu des effets d'ordre présents dans les alliages à forte concentration, il nous semble que l'hydrogène peut jouer un rôle sur ces effets. Dans le paragraphe III.2.2 nous avons examiné l'influence des effets

d'écrantage induit par l'hydrogène sur les jonctions entre dislocations parfaites, de type Lomer, Hirth et glissile. Nous avons montré que l'effet de l'hydrogène sur la stabilité de ces jonctions est faible et ce, y compris pour de très forts niveaux d'écrantage. L'hydrogène ne doit donc pas modifier significativement le durcissement d'écrouissage gouverné par les réactions entre dislocations parfaites. Ceci est d'autant plus vrai dans le cadre de notre étude, compte tenu des teneurs en hydrogène présentes dans nos matériaux (de l'ordre de 2000 ppm atomique).

A la température ambiante et dans la gamme de vitesses de déformation étudiée, nous avons mis en évidence dans le chapitre II que l'épinglage des dislocations par leur atmosphère d'hydrogène représente une contribution constante positive à la contrainte d'écoulement. Les essais de traction uniaxiale réalisés sur des monocristaux de nickel et d'alliage Ni-16Cr ont permis d'identifier cette contribution. En effet, le traînage des atmosphères d'hydrogène par les dislocations se manifeste par une augmentation de la cission résolue critique  $\tau_I$ . Cependant, cet effet de traînage ne permet pas d'expliquer les effets de l'hydrogène sur le taux d'écrouissage dans la mesure où il s'agit d'une contribution constante à la contrainte d'écoulement.

Dans cette étude, nous avons testé en traction du nickel et un alliage Ni-16Cr pour deux teneurs en hydrogène, 1500 et 1900 ppm atomique. Pour le nickel, nous observons, comme Boniszewski et Smith [6], que le taux d'écrouissage dépend de la teneur en hydrogène introduite. En revanche, les effets de l'hydrogène observés dans le Ni-16Cr, une diminution du durcissement, sont identiques pour les deux concentrations étudiées.

### IV.3.3 Perspectives

Cette étude met en lumière qu'il n'existe pas une réponse unique aux effets de l'hydrogène (adoucissante ou durcissante) mais des réponses qui dépendent du couple matériau/hydrogène considéré. Notre démarche nous a conduit à analyser le comportement en traction et en fatigue de matériaux différents chargés en hydrogène dans des conditions identiques. Ce travail permet en outre de définir un certain nombre d'essais susceptibles d'apporter de nouveaux éléments de réponses.

L'étude de la différence de comportements entre monocristaux orientés pour glissement simple « purs » et hydrogénés permet de caractériser les effets de l'hydrogène de manière ostensible. L'un des aspects qui reste à l'étude est l'observation au MET des effets de l'hydrogène sur les microstructures de dislocations. Ce travail, mené en collaboration avec Xavier Feaugas (LEMMA – Université de la Rochelle), est actuellement en cours et seule une partie des résultats a été présentée dans ce mémoire. Outre l'analyse des effets de l'hydrogène sur les microstructures du nickel pour un cisaillement de 0,8, nous comparons les structures de dislocations, pour une même déformation plastique, entre un monocristal hydrogéné en

stade I et un monocristal « pur » en stade II. Cette étude porte aussi sur l'alliage binaire Ni-16Cr.

En outre, il apparaît important d'examiner les courbes contrainte-déformation complètes des monocristaux de nickel et de l'alliage Ni-16Cr et, en particulier, la différence de comportement en stade II et III. Il nous semble que les essais de fatigue oligocyclique ou de traction sur des monocristaux orientés pour glissement simple chargés à différents niveaux de concentration en hydrogène doivent permettre d'évaluer la part revenant aux effets élastiques dans la diminution de la probabilité de glissement dévié. Compte tenu de la dépendance en  $c/T$  de l'indice d'écrantage, nous nous attendons à voir ces effets croître en proportion de la contribution des effets purement élastiques. Cependant, le seul essai véritablement discriminant vis à vis des contributions de l'hydrogène à l'augmentation de la planéité du glissement demeure l'essai de Ferreira *et al.* [25], à savoir la mesure des paramètres géométriques d'un nœud triple dissocié au MET environnemental. La prise en compte de l'écrantage dans l'analyse des ces mesures fournit une première évaluation des rôles respectifs de l'écrantage élastique et de la diminution de l'EDE. Ces mesures réalisées sous différentes pressions partielles d'hydrogène couplées à une modélisation moins « rigide » du nœud triple doivent permettre de confirmer les contributions respectives de ces deux effets.

Il nous apparaît aussi important de comparer les effets de l'hydrogène sur le comportement en traction uniaxiale de monocristaux orientés pour glissement multiple de nickel, de l'alliage Ni-16Cr, et d'un alliage de composition 17Cr-14,6Ni-2,5Mo correspondant au 316L afin de vérifier si l'on retrouve un comportement identique à celui observé dans le cas des polycristaux. Nous estimons que l'un des aspects à examiner afin d'éclaircir les différences de comportements entre le nickel et les alliages (Ni-16Cr, 316L) est la présence d'un ordre à courte distance. Cet effet, rarement pris en considération dans l'étude des effets de l'hydrogène, joue pourtant un rôle essentiel dans les mécanismes de la plasticité. Un certain nombre d'auteurs estiment en effet que le glissement planaire observé dans de nombreux alliages CFC est la conséquence de la destruction de cet ordre à courte distance. Les autres effets, et notamment la baisse de l'énergie de défaut d'empilement, ne venant que renforcer ce mécanisme. Ainsi, nous pensons que le « candidat idéal » pour une telle étude est le système binaire Ni-Cr qui présente un ordre à courte distance pour de fortes concentrations en chrome comme l'ont montré Clément *et al.* [21]. L'analyse de l'influence de l'hydrogène sur des alliages ayant des teneurs contrôlées en chrome, depuis 5% jusqu'à 25% devrait permettre d'observer si la présence d'un ordre à courte distance est le facteur qui permet d'expliquer la différence de comportement entre le nickel et le Ni-16Cr.



## **Conclusion**

L'objectif de cette étude était de caractériser expérimentalement les effets de l'hydrogène sur la contrainte d'écoulement et d'analyser ces résultats à la lumière d'une approche centrée sur les effets élastiques induits par l'hydrogène afin de pouvoir définir ses atouts et ses limites. Notre démarche a été de comparer expérimentalement le comportement d'éprouvettes chargées et non chargées en hydrogène. Pour ce faire, l'originalité de notre travail a été de nous appuyer sur des matériaux modèles, à savoir des monocristaux et des éprouvettes polycristallines de nickel et d'un alliage binaire à base de nickel contenant 16% massique de chrome. De plus, nous avons accordé un intérêt tout particulier au mode de chargement en hydrogène. Le mode d'hydrogénation choisi, en autoclave sous pression d'hydrogène et à température moyenne, nous permet d'une part de maîtriser le taux d'hydrogène et d'autre part d'obtenir une concentration de soluté la plus homogène possible. En complément de cette étude expérimentale, nous avons modélisé l'influence de l'hydrogène sur le comportement des dislocations en nous appuyant sur des modèles élastiques simplifiés. Cette approche nous a conduit à évaluer le rôle de l'hydrogène sur les mécanismes de la plasticité qui mettent en jeu des interactions élastiques entre les composantes coins des dislocations. En conséquence, nous nous sommes intéressés aux effets de l'hydrogène sur les mécanismes d'interactions (multiplication, glissement dévié) et de réactions (formation de jonctions) entre dislocations. L'utilisation d'un modèle tel que le modèle de tension de ligne présente, également, l'intérêt de permettre une évaluation analytique de l'influence des effets élastiques de l'hydrogène sur différents mécanismes participant à la déformation plastique des cristaux.

Comme nous l'avons rappelé dans le chapitre I, la variété des réponses à l'hydrogénation de matériaux de type CFC alimente un « débat » autour des effets induits par l'hydrogène. Schématiquement, ce « débat » tourne autour des effets durcissants ou adoucissants de l'hydrogène. Or, dans le cadre de notre étude, nous avons montré que toutes les typologies des comportements peuvent être reproduites à partir de matériaux simples, du nickel pur, un alliage Ni-16Cr et un acier austénitique de type 316L. En conséquence, il ressort de cette étude que l'on ne peut parler d'un effet mais de multiples effets hydrogène qui dépendent du matériau analysé. La figure IV-24 illustre schématiquement les conséquences de l'hydrogénation sur le comportement des trois matériaux testés.

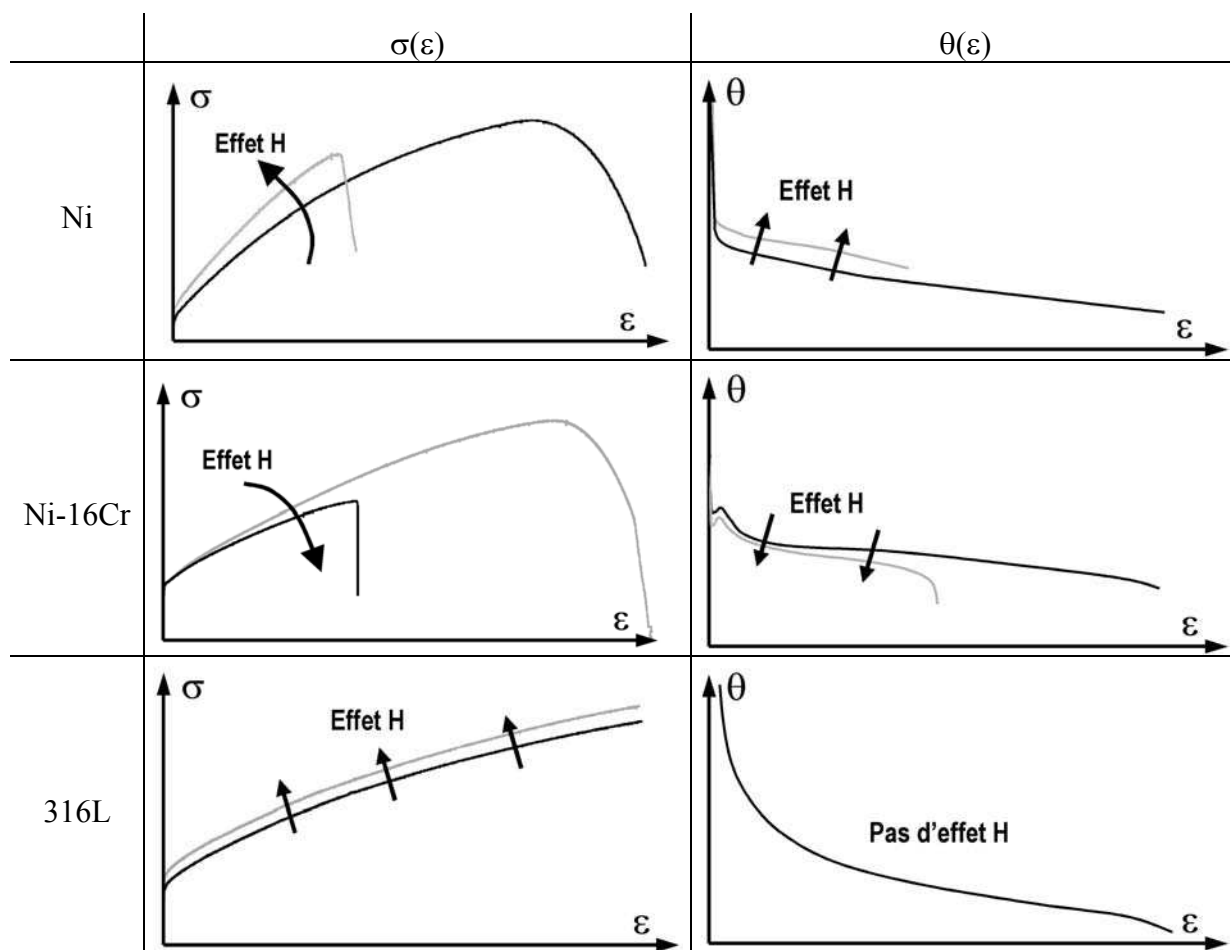


figure IV-24. Représentation schématique des effets induits par l'hydrogène sur le nickel, l'alliage binaire Ni-16Cr et un acier inoxydable austénitique 316L.

De plus, dans toute la gamme de températures étudiée, depuis  $-140^{\circ}\text{C}$  jusqu'à la température ambiante, nous avons constaté que l'hydrogène provoque une fragilisation intergranulaire du nickel. Pour l'alliage Ni-16Cr, nous avons caractérisé le fait que les effets fragilisants de l'hydrogène sont directement assistés par le transport par les dislocations. En deçà du creux de sensibilité à la vitesse, la rupture de cet alliage est parfaitement ductile, alors qu'à la température ambiante elle est fragile et présente un caractère intergranulaire. Enfin dans le cas d'un acier austénitique 316L, les travaux récents de Liang et Sofronis [27, 28] montrent que la présence d'hydrogène se manifeste par la coalescence plus rapide des cupules, entraînant une ductilité réduite.

Enfin, les essais sur les monocristaux apportent la confirmation du fait que l'hydrogène favorise la planéité du glissement. En effet, les essais de traction effectués sur des monocristaux orientés pour glissement simple mettent en lumière le fait que la présence d'hydrogène allonge significativement le stade de glissement plan. Il apparaît en outre que cet effet ne dépend pas du matériau considéré dans la mesure où nous l'avons observé sur du nickel et sur l'alliage Ni-16Cr, et que Yagodzinskyy *et al.* [5] observent le même effet sur un

monocristal d'un acier inoxydable austénitique 18Cr-16Ni-10Mn orienté pour glissement simple. La différence entre ces trois matériaux concerne l'ampleur de l'extension du stade de glissement plan. Dans le cas du nickel cet effet est très marqué, ce qui n'est pas le cas des deux autres matériaux pour lesquels le glissement revêt un caractère intrinsèquement plan en l'absence d'hydrogène.

## **Bibliographie - IV**

- [1] I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "An HVEM study of hydrogen effects on the deformation and fracture of nickel", *Acta Metallurgica* (1986), 34, p. 353-366.
- [2] P. Rozenak, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "HVEM studies of the effects of hydrogen on the deformation and fracture of ASI type 316 austenitic stainless steel", *Acta Metallurgica et Materialia* (1990), 38, p. 2031-2040.
- [3] D. P. Abraham et C. J. Altstetter, "The effect of hydrogen on the yield and flow stress of an austenitic stainless steel", *Metallurgical and Materials transactions A* (1995), 26A, p. 2849-2858.
- [4] D. P. Abraham et C. J. Altstetter, "Hydrogen-enhanced localization of plasticity in an austenitic stainless steel", *Metallurgical and Materials transactions A* (1995), 26A, p. 2859-2871.
- [5] Y. Yagodzinskyy, O. Tarasenko et H. Hänninen, "Effect of hydrogen on plastic deformation of stable 18Cr-16Ni-10Mn austenitic stainless steel single crystals", dans *International Conference on Hydrogen Effects on Material Behavior and Corrosion Deformation Interactions H-CDI*, Jackson Lake Lodge, Morgan, Wy, USA (2002).
- [6] T. Boniszewski et G. C. Smith, "The influence of hydrogen on the plastic deformation ductility and fracture of nickel in tension", *Acta Metallurgica* (1963), 11, p. 165-178.
- [7] B. A. Wilcox et G. C. Smith, "The Portevin-Le Chatelier effect in hydrogen charged nickel", *Acta Metallurgica* (1964), 12, p. 371-376.
- [8] H. Mughrabi, "The cyclic hardening and saturation behaviour of copper single crystals", *Materials Science and Engineering* (1978), 33, p. 207-223.
- [9] J. P. Hirth et J. Lothe, *Theory of dislocations*, Krieger publishing company, Malabar, USA (1982).
- [10] N. Clément et P. Coulomb, "Energies de défaut d'empilement et mécanismes de déformation dans les alliages nickel-chrome", *Philosophical Magazine A* (1974), 30A, p. 663-672.
- [11] T. Magnin, "Développements récents en fatigue oligocyclique sous l'angle de la métallurgie physique", *Mémoires et études scientifiques, Revue de Métallurgie* (1991), 88, p. 33-48.
- [12] A. T. Winter, "A model for the fatigue of copper at low plastic strain amplitude", *Philosophical Magazine A* (1974), 30, p. 719-738.
- [13] J. M. Finney et C. Laird, "Strain localization in cyclic deformation of copper single crystals", *Philosophical Magazine A* (1975), 31, p. 339-366.
- [14] H. Mughrabi, dans *ICSMA 5*, Aachen (1980), édité par P. Haasen, V. Gerold et G. Kostortz, Pergamon press, p. 1615-1626.
- [15] T. Magnin, C. Bosch, K. Wolski et D. Delafosse, "Cyclic plastic deformation behaviour of Ni single crystals oriented for slip as a function of hydrogen content", *Materials Science and Engineering* (2001), A314, p. 7-11.

- [16] D. Delafosse, G. Girardin, C. Bosch, J. P. Chateau et T. Magnin, "Hydrogen - dislocation interactions in nickel: modelling and experiments in cyclic plasticity", dans *Hydrogen effects on materials behaviour and corrosion deformation interactions*, Jackson Lake Lodge, Wyoming (2002), édité par N. R. Moody, A. W. Thompson, R. Ricker, G. Was et R. H. Jones, TMS, Warrendale, PA, p. 191-200.
- [17] N. Renaudot, "Apport de la fatigue oligocyclique sur alliages Ni-Cr-Fe d'ultra haute pureté et sur monocristaux de Ni à la compréhension du rôle de l'hydrogène en corrosion sous contrainte des alliages 600 et 690", Thèse ENS des Mines de St Etienne (1999).
- [18] J. Friedel, *Dislocations*, Pergamon Press, Oxford (1964).
- [19] N. Clément, "Influence de l'ordre à courte distance sur les mécanismes de déformation des solutions solides", dans *L'ordre et le désordre dans les matériaux*, Ecole d'hivers d'Aussois (1984), Les éditions de Physique, p. 167-181.
- [20] V. Gerold et H. P. Karnthaler, "On the origine of planar slip in FCC alloys", *Acta Metallurgica* (1989), 8, p. 2177-2183.
- [21] N. Clément, D. Caillard et J.-L. Martin, "Heterogeneous deformation of concentrated Ni-Cr FCC alloys : macroscopic and microscopic behaviour", *Acta Metallurgica* (1984), 32, p. 961-975.
- [22] A. Akhtar et E. Teghtsoonian, "Plastic deformation of Ni-Cr single crystals", *Metallurgical Transactions* (1971), 2, p. 2757-2763.
- [23] F. Foct, O. De Bouvier et T. Magnin, "Stress corrosion cracking mechanisms of alloy 600 polycrystals and single crystals in primary water - Influence of hydrogen", *Metallurgical and Materials transactions A* (2000), 31A, p. 2025-2036.
- [24] S. Teyseyre, "Influence de l'azote sur la résistance à la corrosion sous cnotrainte d'aciers inoxydables austénitiques en milieu chloruré", Thèse ENS des Mines de St Etienne (2001).
- [25] P. J. Ferreira, I. M. Robertson et H. K. Birnbaum, "Influence of hydrogen on the stacking-fault energy of an austenitic stainless steel", *Materials Science Forum* (1996), 207-209, p. 93-96.
- [26] I. M. Robertson, "The effect of hydrogen on dislocation dynamics", *Engineering Fracture Mechanics* (1999), 64, p. 649-673.
- [27] Y. Liang, P. Sofronis et J. Dodds, R. H., "Interaction of hydrogen with crack-tip plasticity: effects of constraint on void growth", *Materials Science and Engineering A* (2004), 366A, p. 397-411.
- [28] Y. Liang et P. Sofronis, "Toward a phenomenological description of hydrogen-induced decohesion at particle/matrix interfaces", *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* (2003), 51, p. 1509-1531.

## **CONCLUSION**



## - CONCLUSION -

La compréhension des mécanismes qui gouvernent Corrosion Sous Contrainte (CSC) constitue un enjeu industriel majeur compte tenu de la sévérité de ce mode d'endommagement et de la difficulté à le prédire. De nombreuses études ont donc été conduites afin de proposer une modélisation prédictive du comportement en service de ces matériaux. Expérimentalement, l'importance du rôle joué par l'hydrogène dans les mécanismes d'endommagement par CSC a été mise en évidence pour un certain nombre de couples matériaux/milieus. En outre, les similitudes observées entre les modes de rupture en CSC et ceux résultant de la Fragilisation Assistée par l'Hydrogène (FAH) suggèrent que ces deux phénomènes font appels à des séquences élémentaires communes. Pour plusieurs modèles de CSC et de FAH, le mécanisme clef de la fissuration est l'augmentation locale de la plasticité induite par l'enrichissement en hydrogène en pointe de fissure. Dans le chapitre I, nous avons rappelé les caractéristiques de deux de ces modèles, à savoir le modèle de FAH développé par Birnbaum et Sofronis et celui de Magnin qui s'applique à l'endommagement par CSC. L'un des points clefs de ces modèles est l'écrantage des interactions élastiques entre dislocations sous l'action de l'hydrogène dont un certain nombre d'observations *in-situ* au MET, présentées au paragraphe I.2.1, sont venues confirmer l'existence. Ces modélisations s'appuient donc principalement sur les effets de l'hydrogène sur les interactions élastiques entre défauts. Cependant, la principale difficulté que rencontre cette approche est que la modification des mécanismes d'interactions entre dislocations intervenant à l'échelle locale ne rend pas compte des effets macroscopiques de l'hydrogène sur la contrainte d'écoulement.

Cette étude s'inscrit dans une démarche qui vise à caractériser la part revenant aux mécanismes élastiques dans la modification de la plasticité induite par l'hydrogène. Le corollaire de ce travail est aussi d'identifier les éléments manquants à une modélisation efficace des effets induits par l'hydrogène. Pour ce faire, nous avons développé une approche associant étroitement expériences et modélisation afin de lister les différentes contributions des interactions hydrogène-dislocations à la contrainte d'écoulement. Expérimentalement, l'originalité de notre démarche réside dans l'étude comparée des effets de l'hydrogène sur le comportement de matériaux modèles, à savoir du nickel et un alliage à base de nickel contenant 16% massique de chrome. Afin de maîtriser au mieux les effets inhérents à l'hydrogénation, le chargement des éprouvettes est effectué en autoclave sous forte pression



d'hydrogène (100 - 150 bars) à des températures modérées (350 - 450°C). En complément des essais de traction uniaxiale « classique » sur des polycristaux, nous nous sommes appuyés sur des essais « critiques » mettant directement en évidence les effets de l'hydrogène sur certains mécanismes de la plasticité, tels que le vieillissement statique et la sollicitation de monocristaux orientés pour glissement simple en traction et en fatigue oligocyclique. Le volet complémentaire de cette étude expérimentale est la modélisation des effets de l'hydrogène sur les mécanismes de la plasticité qui mettent en jeu des interactions élastiques entre dislocations. En nous appuyant sur le fait que l'hydrogène en solution ségrège dans le champ de contrainte hydrostatique des dislocations coins et y relaxe la contrainte, nous avons évalué l'influence de cette ségrégation sur les propriétés des dislocations et en particulier sur leur tension de ligne. Notre démarche a alors été de déterminer les effets de l'hydrogène sur les mécanismes d'interactions (multiplication, glissement dévié) et de réactions (formation de jonctions) entre dislocations par l'utilisation de modèles élastiques simplifiés tels que le modèle de tension de ligne de De Wit et Koehler. De tels modèles présentent l'intérêt d'apporter une réponse analytique à l'étude des mécanismes de réactions entre dislocations proche de celle obtenue par des modèles plus récents et plus complexes. Notre objectif est d'évaluer l'influence des effets élastiques de l'hydrogène sur différents mécanismes participant à la déformation plastique des cristaux.

Les essais de vieillissement statique, détaillés au chapitre II, permettent d'estimer la force maximale d'épingle des dislocations par leur atmosphère d'hydrogène. Nous montrons que, pour des températures inférieures à -100°C, la valeur à saturation du pic de vieillissement statique,  $\Delta\sigma$ , croît avec la teneur en hydrogène. Cette dépendance vis à vis de la teneur en hydrogène pour des températures telles que les pièges profonds sont saturés par l'hydrogène, illustre le piégeage réversible de l'hydrogène dans le champ élastique des dislocations. Les mesures du pic de vieillissement statique à saturation nous permettent d'estimer que, pour des teneurs en hydrogène de 1500-1900 ppm atomique, la contrainte maximale d'épingle est de l'ordre de 15-20 MPa. Ces essais nous indiquent qu'à la température ambiante et pour des vitesses de déformation ordinaires, les dislocations sont en permanence saturées par leur nuage d'hydrogène. En conséquence, dans ce domaine de température et de vitesse de déformation, le traînage des nuages d'hydrogène correspond à une contribution constante positive à la contrainte d'écoulement. Les essais de traction sur des monocristaux orientés pour glissement simple mettent en évidence cet effet de traînage par une évolution parallèle des stades I des monocristaux chargés et non hydrogénés. Les essais effectués sur l'alliage Ni-16Cr hydrogéné, confirment le fait que le transport de l'hydrogène par les dislocations joue un rôle moteur dans les mécanismes de fragilisation. En effet, à des températures telles que l'hydrogène est sensiblement moins mobile que les dislocations la seule présence d'hydrogène dans le réseau ne suffit pas provoquer cette fragilisation.

Les essais sur les monocristaux, présentés au paragraphe IV.1, apportent la confirmation du fait que l'hydrogène favorise la planéité du glissement. L'hydrogène allonge significativement le stade I des monocristaux orientés pour glissement simple. Les résultats obtenus en fatigue oligocyclique montrent aussi que l'hydrogène tend à diminuer la probabilité de glissement dévié en retardant l'émergence de structure de Bandes de Glissement Persistantes, BGP, et en abaissant sensiblement la contrainte cyclique à saturation. La modélisation des effets de l'hydrogène sur la dissociation des dislocations nous indique que l'augmentation de la planéité du glissement induite par l'hydrogène résulte de l'action conjuguée entre effets élastiques et effets de cœur (baisse de l'énergie de défaut d'empilement), et non d'un effet indépendant.

Dans cette étude nous avons étudié le comportement en traction de trois matériaux différents (du nickel, un alliage binaire Ni-16Cr et un acier inoxydable austénitique 316L) chargés en hydrogène dans des conditions identiques. L'originalité de nos résultats réside dans le fait que les effets observés sur ces trois matériaux, pour des conditions de chargement rigoureusement identiques, sont représentatifs de l'ensemble des manifestations macroscopiques de l'hydrogène répertoriées. Dans le cas du nickel, le chargement en hydrogène conduit à une augmentation de la limite d'élasticité et du taux d'écrouissage, ces effets dépendant de la teneur en hydrogène. Nous observons pour des concentrations de 1500-1900 ppm atomique dans du Ni-16Cr, une diminution du taux d'écrouissage alors que la limite d'élasticité n'est pas significativement affectée. De plus, l'effet adoucissant observé est indépendant de la teneur en hydrogène, pour la gamme de concentration analysée. Enfin, dans le cas de l'acier 316L, nous mesurons une augmentation marquée de la limite d'élasticité pour une teneur en hydrogène de 0,25% atomique. En revanche, pour cette concentration, nous ne constatons aucune modification du taux d'écrouissage, les deux courbes contrainte-déformation étant parfaitement parallèles. Dans la littérature, il apparaît que pour des teneurs supérieures, l'hydrogène provoque une diminution du taux d'écrouissage aux fortes déformations. Un tel résultat illustre le fait que les mécanismes d'écrantage intervenant entre dislocations ne suffisent pas à expliquer les effets de l'hydrogène sur les lois de comportement macroscopiques. Il n'existe donc pas une réponse unique aux effets de l'hydrogène (adoucissante ou durcissante) mais des réponses qui dépendent du couple matériau/hydrogène considéré.

En parallèle à cette étude expérimentale, nous avons modélisé les effets élastiques de l'hydrogène sur les mécanismes de la plasticité. Pour ce faire, nous nous sommes appuyés sur un certain nombre d'hypothèses physiques. Nous estimons que l'hydrogène occupe uniquement les sites octaédriques des matériaux CFC, c'est à dire que nous prenons en considération uniquement les effets de dilatation induit par le soluté. Dans cette modélisation, nous considérons que les dislocations sont en permanence épinglées par leur atmosphère d'hydrogène. Cette hypothèse s'appuie sur le fait qu'à la température ambiante et pour des

vitesses de déformation « ordinaires », l'hydrogène est nettement plus mobile que les dislocations. Enfin, nous supposons que seuls les effets élastiques affectent le comportement des dislocations. A partir de modèles élastiques simplifiés nous apportons de nouveaux résultats quantitatifs pour l'interprétation des effets élastiques induits par l'hydrogène. Nous confirmons que l'écrantage des interactions élastiques entre composantes coin des dislocations agit directement sur la largeur de dissociation. Ceci se traduit, d'une part par une contribution de ces effets à la diminution de la probabilité de glissement dévié et, d'autre part par l'affaiblissement des verrous de Lomer-Cottrell. Nous montrons que les effets de l'hydrogène modifient la dépendance angulaire de l'énergie de ligne d'une dislocation. En conséquence, plus la teneur en hydrogène croît, plus la tension de ligne des dislocations vis diminue. Inversement, la rigidité des dislocations coin augmente avec les effets d'écrantage. En nous appuyant sur ces résultats, il est possible d'analyser les mécanismes de réactions entre dislocations. Il apparaît que, pour être significatifs, ces effets nécessitent de très fortes teneurs en hydrogène. Or, les expériences montrent que, pour la plupart des matériaux, même de faibles quantités d'hydrogène se traduisent par une altération significative des mécanismes de la plasticité. Cette modélisation illustre ainsi une des limites d'une approche basée uniquement sur la modification des interactions élastiques. Nous pensons donc que les effets induits par l'hydrogène résultent d'effets combinés associant ces effets élastiques à d'autres effets d'interaction entre l'hydrogène et le cœur des dislocations. Cependant, nous estimons qu'au delà d'une certaine teneur en hydrogène, les effets chimiques sont susceptibles d'être saturés, contrairement aux effets élastiques qui continuent d'augmenter avec la concentration en hydrogène. Il est donc important de prendre en compte ces effets élastiques dans les mécanismes locaux de CSC dans la mesure où il est possible d'atteindre des concentrations locales très élevées en pointe de fissure, par exemple dans les alliages austénitiques en milieu chloruré.

Notre étude s'inscrit dans une démarche d'évaluation expérimentale la plus systématique possible des mécanismes de déformation affectés par l'hydrogène afin de fournir des données d'entrées quantitatives pour les simulations numériques des mécanismes de rupture en CSC. Les résultats que nous apportons vont permettre d'améliorer les simulations des interactions hydrogène-dislocations en pointe de fissure notamment, par la prise en compte des effets de traînage visqueux mais aussi des effets sur les mécanismes d'interactions et de réactions entre dislocations. De plus, nous avons défini au paragraphe IV.3.3 un certain nombre d'axes de recherches susceptibles d'éclairer les questions encore en suspens. En outre, nous apportons un outil de modélisation simple qui peut être appliqué à d'autres systèmes matériau/soluté. Comme nous l'avons rappelé, les seules hypothèses utilisées sont les suivantes :

- L'effet majoritaire du soluté est la dilatation isotrope du réseau ;

- Les atomes de soluté ségrègent en permanence sur les dislocations. Il s'agit donc d'être dans un domaine de vitesse de déformation et de température situé au-dessus du domaine de vieillissement dynamique ;
- Les effets d'écrantage sont indépendants de la distance de séparation entre dislocations.

Quand il y a épinglage des dislocations, ces effets élastiques sont présents, mais il reste à évaluer leur proportion par rapport aux effets de cœur et aux effets « chimiques ». Pour ce faire, nous apportons un outil de modélisation simple qui permet d'estimer cette contribution élastique.

De nombreuses questions restent largement « ouvertes » dans le domaine des interactions hydrogène-plasticité, notamment celles qui nécessitent des changements d'échelles. Des simulations à l'échelle atomique, en particulier *ab-initio*, permettent d'aborder les effets chimiques et les effets de cœur avec une bonne description des potentiels d'interaction métal-hydrogène. Cependant, les configurations étudiées contiennent un nombre insuffisant d'atomes pour espérer simuler directement des concentrations aussi faibles que celles mises en œuvre dans cette étude. Le changement d'échelle vers celle des interactions élastiques entre défauts doit donc s'appuyer sur des modèles physiques intermédiaires. De la même manière, la détermination de lois de comportement macroscopiques à partir des propriétés individuelles des dislocations est un chantier de grande envergure, encore inachevé, qui nécessite la mise en œuvre des méthodes de simulation les plus récentes (dynamique des dislocations et simulations de plasticité cristalline). Vouloir incorporer directement les effets de l'hydrogène dans ce type d'approche est aujourd'hui prématuré. En revanche, un prolongement expérimental particulièrement intéressant du présent travail serait la détermination de surfaces d'écoulement de polycristaux chargés en hydrogène. En particulier, la présence éventuelle de points anguleux sur les surfaces d'écoulement des alliages hydrogénés constituerait une cause de localisation de la déformation lors de trajets de chargements complexes et serait susceptible d'affecter la dissipation plastique en pointe de fissure. Cette étude, suggérée par Sofronis, est réalisable avec les moyens mis en œuvre dans le présent travail.

Pour finir, il faut préciser que les mécanismes de CSC ne se limitent pas à l'absorption d'hydrogène en pointe de fissure. La dissolution anodique, en particulier la dissolution ou l'oxydation sélective dans les alliages, est susceptible de conduire à l'absorption de lacunes en pointe de fissure. Cette injection massive de lacunes doit elle aussi affecter fortement la plasticité de fond de fissure. L'étude des interactions lacunes de dissolution-plasticité est donc d'une importance capitale pour modéliser les effets d'environnement. Il nous semble que le présent travail fournit une méthodologie adaptée pour synthétiser et prolonger les résultats actuellement disponibles dans ce domaine.



## **ANNEXES**



**Annexe I**

On place une dislocation coin  $\vec{b}_2$  dans le champ de contrainte d'une dislocation  $\vec{b}_1$ , ces deux dislocations ayant des vecteurs de Burgers parallèles à l'axe X. Dans cette configuration, illustrée par la figure AI-1, les plans de glissement de ces dislocations sont parallèles.

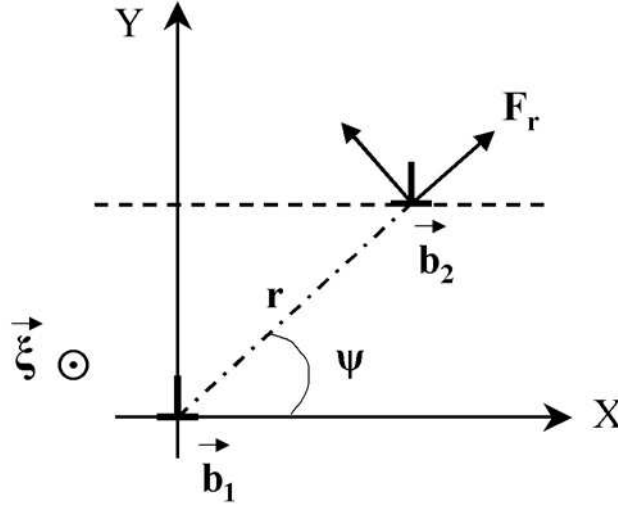


figure AI-1. Représentation schématique de l'interaction entre deux dislocations coins parallèles.

La relation de Peach-Koehler, donnée par l'équation (AI.1), permet de calculer la force qu'exerce la dislocation  $\vec{b}_1$  sur la dislocation  $\vec{b}_2$ .

$$\vec{F}_u = (\vec{b}_2 \cdot \vec{\sigma}) \otimes \vec{\xi} \quad (\text{AI.1})$$

La force d'interaction radiale entre ces deux dislocations coin est alors donnée par :

$$F_r = b_2 \sigma_{r\psi} \cos \psi - b_2 \sigma_{rr} \sin \psi \quad (\text{AI.2})$$

Les composantes du tenseur des contraintes autour de la dislocation coin  $\vec{b}_1$  en présence de son atmosphère d'hydrogène étant données par les équations (III.15) à (III.18), l'équation (AI.2) s'écrit :

$$F_r = \frac{\mu b_1 b_2}{2\pi(1-\nu^H)r} (\cos^2 \psi + \sin^2 \psi) = \frac{\mu b_1 b_2}{2\pi(1-\nu^H)r} \quad (\text{AI.3})$$



## Annexe II

Dans milieu élastique continu et isotrope, les équations (III-15) à (III-18) donnent les composantes du tenseur des contraintes d'une dislocation coin modifiée par la ségrégation de l'hydrogène. L'expression générale de l'énergie élastique d'une dislocation est donnée par :

$$W = \int_{r_0}^R \int_0^L \int_0^{2\pi} r \left( \frac{(\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3)^2}{2E} + \frac{1+\nu}{E} (\sigma_4^2 + \sigma_5^2 + \sigma_6^2 - \sigma_1\sigma_2 - \sigma_1\sigma_3 - \sigma_2\sigma_3) \right) dr dz d\theta \quad (\text{AII.1})$$

où  $b$  est la norme du vecteur de Burgers,  $\mu$  le module de cisaillement,  $\nu$  le coefficient de Poisson,  $E$  le module d'Young,  $R$  et  $r_0$  les rayons de coupures externes et internes. Dans le cas d'une dislocation coin, cette expression se simplifie alors comme suit :

$$W = \int_{r_0}^R \int_0^L \int_0^{2\pi} r \left( \frac{(\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3)^2}{2E} + \frac{1+\nu}{E} (\sigma_6^2 - \sigma_1\sigma_2 - \sigma_1\sigma_3 - \sigma_2\sigma_3) \right) dr dz d\theta \quad (\text{AII.2})$$

soit  $W = \int_{r_0}^R \int_0^L \int_0^{2\pi} r \left( \frac{\sigma_6^2}{2\mu} + \frac{1}{2E} (\sigma_1^2 + \sigma_2^2 - 2\nu\sigma_1\sigma_2 - \sigma_3^2) \right) dr dz d\theta .$

Les composantes du tenseur des contraintes en présence de son atmosphère d'hydrogène étant données par les équations (III.15) à (III.18), l'équation (AII.2) s'écrit alors :

$$W = \int_{r_0}^R \int_0^L \int_0^{2\pi} r \left( \frac{\sigma_6^{H^2}}{2\mu} + \frac{1}{2E} (\sigma_1^{H^2} + \sigma_2^{H^2} - 2\nu\sigma_1\sigma_2 - \sigma_3^{H^2}) \right) dr dz d\theta . \quad (\text{AII.3})$$

Tout calcul fait, l'énergie élastique d'une dislocation coin modifiée par la présence de l'hydrogène est donnée par :

$$W_{coin}^H = \frac{\mu b^2 L}{4\pi(1-\nu)} \left\{ 1 - \frac{S(T, c) [1 + 3\nu - 2\nu S(T, c) - 4S(T, c) + 2S(T, c)^2]}{1 + \nu - 2S(T, c)} \right\} \ln \left( \frac{R}{r_0} \right). \quad (\text{AII.3})$$

Pour  $S(T, c) = 0$ , on retrouve bien l'expression classique de l'énergie de ligne d'une dislocation coin à savoir :

$$W_{coin} = \frac{\mu b^2 L}{4\pi(1-\nu)} \ln \left( \frac{R}{r_0} \right).$$

### Annexe III

Chateau [1] a montré que, du point de vue de la cisssion résolue dans le plan de glissement, le nuage d'hydrogène associé à une dislocation de vecteur de Burgers  $b_i$ , dans sa configuration à l'équilibre avec la contrainte locale, pouvait être assimilé à une « anti-dislocation » de vecteur de Burgers de norme  $|S(T,c)\vec{b}_i|$ , où  $S(T,c)$  est l'indice d'écrantage défini par l'expression (III.20). Cette « anti-dislocation » étant centrée sur la dislocation elle-même, on peut considérer que la dislocation et son nuage d'hydrogène forment un dipôle de montée de hauteur nulle. En conséquence, la force exercée par l'atmosphère d'hydrogène sur la dislocation est une force de montée et la composante de cisaillement de cette interaction est nulle. Les trois points suivants en découlent :

#### 1. Force de Peach et Koehler entre deux dislocations

Suivant le principe de superposition, la détermination de la force exercée par la dislocation de vecteur de Burgers  $\vec{b}_2$  sur la dislocation 1 ( $\vec{b}_1$ ) peut se décomposer en trois étapes représentées sur la figure AIII-1. Dans ce calcul, nous assimilons les atmosphères d'hydrogène de chaque dislocation  $\vec{b}_i$  (avec  $i = 1$  ou  $2$ ) à une « anti-dislocation » de vecteur de Burgers de norme  $|S(T,c)\vec{b}_i|$ .

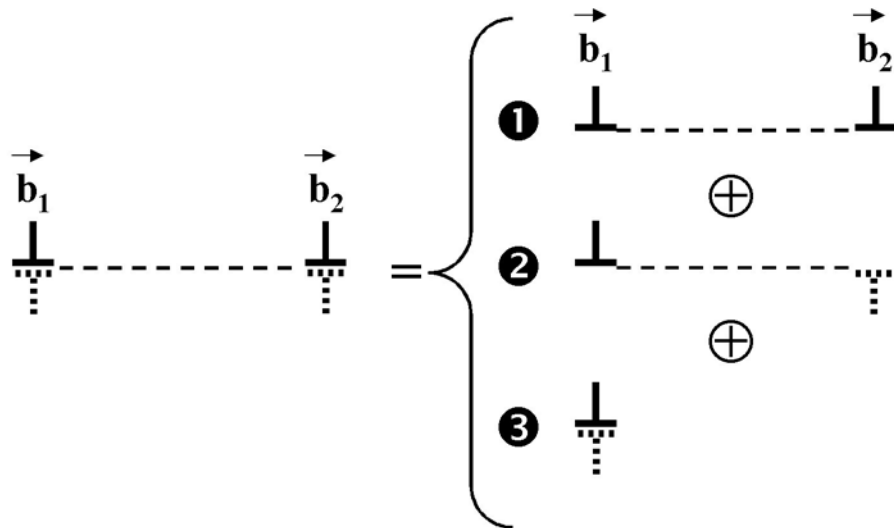


figure AIII-1. Représentation schématique des trois étapes conduisant au calcul de la force exercée entre deux dislocations saturées en hydrogène. En pointillés sont représentées les atmosphères d'hydrogène nous assimilons pour ce calcul à des « anti-dislocations » liées aux dislocations  $i$  (avec  $i = 1$  ou  $2$ ) de vecteurs de Burgers de norme  $|S(T,c)\vec{b}_i|$ .

Suivant le processus présenté sur la figure AIII.1, la force d'interaction exercée par la dislocation 2 sur la dislocation 1 se décompose en trois forces :

1 – La force d'interaction entre deux dislocations coin parallèles de vecteur de Burgers  $b_1$  et  $b_2$  vaut  $\frac{\mu b_1 b_2}{2\pi(1-\nu)r}$

2 – La force d'interaction entre deux dislocations coins parallèles de vecteurs de Burgers  $b_1$  et  $S(T,c)b_2$  vaut  $\frac{-\mu b_1 S(T,c) b_2}{2\pi(1-\nu)r}$

3 – La composante de cisaillement de l'interaction entre la dislocation  $b_1$  et son atmosphère d'hydrogène est nulle.

Le bilan des forces donne  $F_{2 \rightarrow 1} = \frac{\mu b_1 b_2 (1 - S(T,c))}{2\pi(1-\nu)r}$  ce qui correspond au résultat (III.21) du

calcul présenté en Annexe I. Chateau a par ailleurs montré numériquement que ce résultat pouvait se généraliser à deux dislocations de caractères quelconques, non nécessairement coplanaires, en ne considérant que les composantes coins de ces dislocations et la cisssion résolue dans les plans de glissement respectifs.

## 2. Force de Peach et Koehler due à une contrainte extérieure

La démarche mise en œuvre pour le calcul de l'influence de la ségrégation de l'hydrogène sur la force exercée par une contrainte extérieure sur une dislocation épinglée par son atmosphère d'hydrogène est identique. La décomposition est schématisée sur la figure AIII.2.

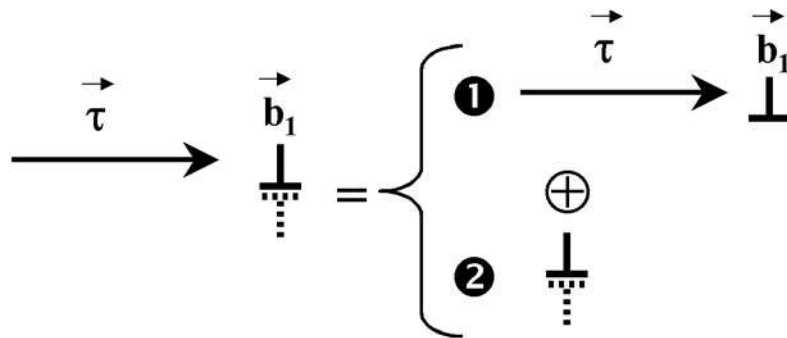


figure AIII-2. Représentation schématique du calcul de la force exercée par une contrainte extérieure sur une dislocation saturée par son atmosphère de Cottrell. Le nuage d'hydrogène de la dislocation  $b_1$  est assimilé à une « anti-dislocation » de vecteur de Burgers respectifs  $|S(T,c)\vec{b}_1|$ .

Les deux contributions sont alors :

1 – L'interaction entre la contrainte de cisaillement et la dislocation privée de son nuage d'hydrogène,

2 – La composante de cisaillement de l'interaction entre la dislocation  $b_I$  et son atmosphère d'hydrogène est nulle.

Du point de vue de la cisssion résolue, l'hydrogène n'a donc aucun effet sur la force due à un cisaillement extérieur appliqué dans le plan de glissement lorsque la dislocation est épinglée par son atmosphère d'hydrogène, c'est à dire lorsque cette atmosphère est centrée sur la position de la dislocation.

### 3. Force de rappel lors du désancrage de la dislocation

Dans le cas d'une force appliquée à une dislocation séparée de son nuage de soluté, il est nécessaire de prendre en compte la force d'épinglage entre la dislocation et son nuage. C'est le cas des essais de vieillissement statique présentés au Chapitre II. Lors de la recharge, les dislocations sont « arrachées » à leurs atmosphères d'hydrogène que l'on peut considérer comme « immobiles » à la température d'essai. Suivant le même raisonnement que précédemment, l'interaction entre la dislocation et le nuage maintenant « délocalisé » vaut 
$$\frac{-\mu b^2 S(T, c)}{2\pi(1-\nu)r}$$

Nous avons mesuré au chapitre II une contrainte maximale d'épinglage,  $f_0$ , d'environ 20 MPa dans le cas du nickel contenant 1900 ppm atomique d'hydrogène.

### Bibliographie

- [1] J. P. Chateau, "Vers une quantification des mécanismes de corrosion sous contrainte: simulations numériques des interactions hydrogène-dislocations en pointe de fissure", Thèse ENS des Mines de St Etienne (1999).





## **Résumé :**

Nous évaluons les différentes contributions des interactions hydrogène-dislocations sur la plasticité de matériaux cfc hydrogènes afin d'alimenter des modèles prédictifs d'endommagement par corrosion sous contrainte.

Par des essais de vieillissement, nous quantifions la contribution positive à la contrainte d'écoulement du traînage des atmosphères de solutés par les dislocations. Nous démontrons le rôle du transport de l'hydrogène par les dislocations dans le mécanisme de fragilisation. Nous modélisons l'influence de l'écrantage du champ élastique des dislocations par l'hydrogène sur les mécanismes élémentaires de la plasticité et montrons que la diminution de la probabilité de glissement dévié résulte de l'action conjuguée d'effets élastiques et de cœur. Les essais sur monocristaux démontrent la contribution prépondérante des effets sur le glissement dévié. Les essais de traction sur des polycristaux illustrent la diversité des réponses macroscopiques observées dans les alliages.

## **Mots clefs :**

Hydrogène ; Dislocations ; Nickel et alliages à base nickel ; Plasticité ; Vieillissement ; Corrosion sous contrainte ; Modélisation

---

## **HYDROGEN-PLASTICITY INTERACTIONS IN NICKEL AND NICKEL BASE ALLOYS**

## **Abstract :**

We evaluate the different contributions of the hydrogen-dislocation interactions to the plasticity of fcc materials in order to feed predictive models of stress corrosion cracking.

Static strain ageing experiments are used to quantify the hardening contribution of solute drag by dislocations to the flow stress. We demonstrate the role of hydrogen transport by dislocations on the fracture mechanism. We model the influence of the screening of the elastic field of dislocations by hydrogen on elementary plasticity mechanisms and we conclude that the decrease of the cross slip ability arises from the combined action of elastic and core effects. The testing of single crystals shows that the major effect is on the cross slip mechanism. Tensile tests on polycrystals enlighten the diversity of macroscopic responses observed in alloys.

## **Keywords :**

Hydrogen ; Dislocations ; Nickel and nickel base alloys ; Plasticity ; Ageing ; Stress corrosion cracking ; Modelling